Bestimmung der inkommensurablen Verzerrungswelle des Antiferromagneten Chrom mit Röntgenbeugungsexperimenten

Dissertation

zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften

der Fakultät für Physik
der Eberhard-Karls-Universität Tübingen

vorgelegt von
WERNER KUGLER
aus Ebingen

1983

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Bestimmung der inkommensurablen Verzerrungswelle des Antiferromagneten Chrom mit Röntgenbeugungsexperimenten

Dissertation

zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften

der Fakultät für Physik
der Eberhard-Karls-Universität Tübingen

vorgelegt von
WERNER KUGLER
aus Ebingen

1983

Tag der mündlichen Prüfung:	14. November 1983
Dekan:	Professor K.-H. Herrmann
1. Berichterstatter:	Professor W. Prandl
2. Berichterstatter:	Professor K.-H. Herrmann

Abstract

Kugler, Werner

Bestimmung der inkommensurablen Verzerrungswelle des Antiferromagneten Chrom mit Röntgenbeugungsexperimenten

Chrom geht bei T_N = 312 K durch einen Phasenübergang 1. Art vom paramagnetischen in den antiferromagnetischen Zustand über, der sich durch eine inkommensurable Spindichtewelle beschreiben läßt.
Da man in der Röntgenbeugung neben den starken Hauptreflexen zusätzliche, schwache Satellitenreflexe beobachtet, muß auch die Kristallstruktur moduliert sein. Um diese Modulation zu bestimmen, wurden die Haupt- und Satellitenreflexe mit dem hochauflösenden fokussierenden Einkristalldiffraktometer als Funktion der Temperatur gemessen. Es werden in der vorliegenden Arbeit verschiedene Modulationsmodelle diskutiert und mit den Meßergebnissen verglichen. Demnach liegt eine harmonische longitudinale Verzerrungswelle mit $q_v[2\pi/a]$ = 0,0975 (50 K) vor. Die Amplitude der Verzerrungswelle wurde aus den durch die Hauptreflexintensitäten skalierten Satellitenintensitäten und zum Vergleich mit Hilfe der aus dem Comptonstreuquerschnitt bestimmten Primärstrahlintensität der monochromatischen Röntgenstrahlung zu A_v = 0,001787 a (50 K) ermittelt. Der Temperaturverlauf der Amplitude A_v, des Wellenvektors q_v und der Gitterkonstanten a wurde im Bereich 350 K $\leq$ T $\leq$ 40 K bestimmt. Weiterhin wird ein Modell diskutiert, bei dem sich die Modulation aus einer harmonischen Verzerrungswelle und deren Oberwellen zusammensetzt. Dabei wurde der Maximalwert der Amplitude der eventuell vorhandenen 1. Oberwelle aus dem Streuuntergrund zu $|\vec{A}_{2v}| \leq |\vec{A}_v|/10$ bestimmt. Bei einem Modulationsmodell, bei dem zusätzlich zur harmonischen Verzerrungswelle eine harmonische Ladungsdichtewelle auftritt, ergibt sich nach einer Abschätzung die Maximalamplitude der Ladungsdichtewelle zu $A_D \leq 0{,}001$, d.h. zu $\leq$ 1 % des Atomformfaktors.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung 1

1.1 Modulierte Strukturen 1
1.2 Experimente zur magnetischen Ordnung in Chrom . 8

2. Probenpräparation 16

3. Aufbau des Meßplatzes 17

3.1 Das fokussierende Einkristalldiffraktometer . . 17
3.1.1 Prinzip und Beugungsanordnung 17
3.1.2 Aufbau des fokussierenden Einkristall-
diffraktometers 20
3.2 Tieftemperaturteil 20
3.3 Diffraktometersteuerung 21
3.4 Meß- und Nachweiskette, Datenerfassung 22

4. Optimierung des Meßplatzes bezüglich des Meß-
problems 24

4.1 Optimierung der Primärstrahlintensität 25
4.2 Verminderung des Untergrunds und der Fluores-
zenzstrahlung 25

5. Messung der Röntgensatelliten 30

5.1 Messung der Satelliten $2\pi\vec{H}\pm\vec{q}_v$ erlaubter Haupt-
reflexe 30
5.2 Suche nach höheren Ordnungen der Satelliten
$2\pi\vec{H}\pm n\vec{q}_v$ 33
5.3 Messung der Satelliten verbotener Hauptreflexe . 35
5.4 Messung der Satelliten von Hauptreflexen ver-
schiedener Ordnung 36
5.4.1 Temperaturabhängigkeit der Gitterkon-
stanten 40
5.4.2 Temperaturabhängigkeit des Wellenvektors . 42

6. Absoluteichung der Primärstrahlintensität 43

6.1 Bestimmung der Primärstrahlintensität durch die Absorptionsfolienmethode 43

6.2 Bestimmung der Primärstrahlintensität aus dem Comptonstreuquerschnitt 44

6.2.1 Versuchsaufbau zur Messung der Comptonintensität 44

6.2.2 Eichung der Energieskala und Bestimmung der Energieauflösung 46

6.2.3 Messung der Comptonintensität 50

6.2.4 Auswertung der Comptonintensitätsmessungen 54

6.3 Bestimmung der Primärstrahlintensität aus den Hauptreflexen 57

7. Diskussion der Gültigkeit der verschiedenen Modelle für die Modulation durch den Vergleich mit den Meßergebnissen 61

7.1 Modulation der Streukraftdichte (Ladungsdichtewelle) 61

7.2 Modulation der Ortsparameter (Verzerrungswelle) 67

7.2.1 Bestimmung der Amplitude der Verzerrungswelle aus den durch die Hauptreflexintensitäten skalierten Satellitenintensitäten 76

7.2.2 Bestimmung der Amplitude der Verzerrungswelle aus den berechneten, absoluten Satellitenintensitäten 78

7.2.3 Temperaturabhängigkeit der Amplitude der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle 81

7.2.4 Intensität der Satelliten höherer Ordnungen 83

7.2.5 Unterschied in der modulierten Struktur oberhalb und unterhalb des Spin-Flip Übergangs T_{SF} 85

7.2.6 Abschätzung der Amplitude der Phasenmodulation für das Modell einer phasenmodulierten harmonischen Verzerrungswelle 85

7.2.7 Abschätzung des Intensitätsbeitrags der magnetischen Röntgenstreuung 87

8. Diskussion des Modells einer durch eine harmonische Verzerrungswelle und deren Oberwellen modulierten Struktur 88

8.1 Intensität der Röntgenstrahlinterferenzen für das Modell einer harmonischen Verzerrungswelle und deren erste Oberwelle 88

8.1.1 Verallgemeinerung auf weitere Oberwellen zur harmonischen Verzerrungswelle 91

8.2 Abschätzung der Amplitude der 1. Oberwelle aus dem Untergrund 91

9. Diskussion eines Modells der Kombination einer harmonischen Verzerrungswelle und einer harmonischen Ladungsdichtewelle 93

10. Vorschlag zur Messung der Satelliten mit der γ-Strahlung einer Au^{198}-Quelle 97

11. Zusammenfassung 101

12. Anhang 104

A Streutheorie 104

A1 Streuung von Röntgenstrahlen an einer periodischen, unmodulierten Struktur 104

A1.1 Intensität der elastisch kohärent gestreuten Röntgenstrahlung 104

A1.1.1 Integrales Reflexionsvermögen . . . 107

A1.2 Inelastisch inkohärent gestreute Comptonintensität 109

A2 Streuung von Röntgenstrahlen an einer modulierten Struktur 114

A2.1 Theorie der Modulation der Streukraftdichte (Ladungsdichtewelle) 114

A2.1.1 Theorie der phasenmodulierten Ladungsdichtewelle 116
A2.2 Theorie der Modulation der Ortsparameter (Verzerrungswelle) 120
A2.1.1 Beispiel einer harmonischen transversalen Verzerrungswelle in Richtung $\underset{\sim}{a}$ 123
A2.2.2 Beispiel einer harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle in Richtung $\underset{\sim}{a}$ 123
A2.2.3 Theorie einer phasenmodulierten harmonischen Verzerrungswelle . . . 124

A3 Theorie eines Modells der Kombination einer harmonischen Verzerrungswelle und einer harmonischen Ladungsdichtewelle 127
A3.1 Gleiche Perioden der beiden Modulationswellen 129

B Verteilung der Domänen auf das leuchtende Kristallvolumen 133

C Berechnung der Besselfunktion 1. Art der Ordnung n 137

D Berechnung der Röntgenstrahldivergenzen 140
D1 Horizontale und vertikale Röntgenstrahldivergenzen im Strahlengang Brennfleck der Röntgenröhre - Probe 140
D2 Horizontale und vertikale Divergenzen im Strahlengang Probe - Zählrohr 143
D2.1 Elastisch kohärent gestreute, fokussierte Röntgenstrahlung 144
D2.2 Inelastisch inkohärent gestreute, isotrope Comptonintensität 147

E Berechnung des leuchtenden Kristallvolumens unter Berücksichtigung der Absorption 155

F Berechnung des Fokalabstandes f_{RF} eines Reflexes im allgemeinen Strahlengang 157

G Zusammenhang zwischen dem Wellenvektor $\vec{q}_m$ der primären SDW und dem Wellenvektor $\vec{q}_v$ der magnetostriktiven Verzerrungswelle 161

Literaturverzeichnis 167

1. EINLEITUNG

1.1. Modulierte Strukturen

Modulationen periodischer Vorgänge sind grundlegende Phänomene in der Physik. Zu den bekanntesten Erscheinungsformen gehört die Modulation eines Signals (z.B. eines Fernsprech-, Fernschreib- oder Fernsehsignals) in der Nachrichtentechnik. Dabei kann die Veränderung des periodischen Vorgangs (der Schwingung) durch die Veränderung der Amplitude, der Frequenz oder der Phase erfolgen, wobei die Modulation der Amplitude das wichtigste Verfahren bei Radiowellen darstellt und von den Rundfunksendern im Mittelwellen- und Langwellenbereich verwendet wird.

Eine wichtige Rolle spielt die Modulation in der Optik bei der Umwandlung phasenmodulierter Sinusschwingungen in amplitudenmodulierte Sinusschwingungen im Phasenkontrastmikroskop.

In der Festkörperphysik wird, der heutigen Terminologie folgend, mit dem Begriff " M o d u l i e r t e S t r u k t u r " eine periodische oder teilweise periodische Störung einer Kristallstruktur mit einer Periode, die deutlich größer als die Einheitszellendimension ist, beschrieben /1/.
Man unterscheidet dabei Modulationen, die inkommensurabel mit der Grundgitterperiodizität sind, wenn das Verhältnis der auferzwungenen Periode zu der Einheitszelle irrational ist, wobei meist noch zusätzlich gefordert wird, daß die auferzwungene Überperiode eine kontinuierliche Änderung mit der Änderung äußerer Parameter wie Druck, Temperatur oder Zusammensetzung erfahren soll, von einer Modulation, die kommensurabel mit der Grundgitterperiodizität ist, wenn das Verhältnis der Überperiode zur Einheitszelle rational ist (Überstruktur).

Erstmals in der Geschichte der Physik tauchten bei der optischen Beugung an Strichgittern neben den ganzzahligen Hauptmaxima zusätzliche Linien auf. Sie wurden damals "Gittergeister" genannt und folgerichtig auf periodische Unregelmäßigkeiten des Strichgitters, das dadurch eine "Oberperiode" erhielt, zurückgeführt. Eine umfassende Theorie über periodische Deformationen eines Gitters geht auf Kayser (1900) /2/ zurück.

Linienverbreiterungen bei Debye-Scherrer Aufnahmen an polykristallinen, gewalzten Metallen (Ag, Cu, Ta, α-Messing) wurden von Dehlinger (1927) /3/ in Analogie zum "Obergitter" bei optischen Strichgittern auf eine periodische Deformation des Kristalls zurückgeführt, wobei die Verbreiterung durch das nahe Zusammenrücken der zusätzlichen Linien im Beugungsbild zustandekommt.
Bei Experimenten an Einkristallen einer Al-Cu Legierung fand Preston (1938) /4/ zusätzliche schwache Reflexe um die Hauptreflexe gruppiert, die er "satellites" nannte und auf das Zusammenwirken einer sinusförmigen Dichtewelle und einer sinusförmigen longitudinalen Verschiebungswelle zurückführte.

In den letzten Jahren hat das Interesse an "modulierten" Substanzen stark zugenommen, nachdem durch verbesserte Meßtechniken bei Elektronen-, Neutronen- und Röntgenbeugungsexperimenten gezeigt wurde, daß eine Vielzahl von Substanzen beim Phasenübergang eine periodische Deformation erfahren, deren vergrößerte Periode sich durch das Auftreten zusätzlicher scharfer Reflexe neben den schon vorhandenen Hauptreflexen zeigt.

Dies führte zu der Klassifizierung inkommensurabel modulierter Phasen in: Displazive Modulation, magnetische Modulation und Modulation der Zusammensetzung /5/.
Beispiele von Substanzen mit modulierter Struktur findet man in der Literatur /1,6,7/, die aber auf Grund der raschen Entwicklung dieses Gebietes nicht vollständig ist.

Stellvertretend für viele sollen einige häufig untersuchte Substanzen erwähnt werden: Isolatoren mit einer displaziv modulierten Struktur sind z.B. K_2SeO_4, δ-Na_2CO_3 und Rb_2ZnCl_4, ein Leiter mit einer eindimensionalen displaziven Modulation ist KCP ($K_2Pt(CN)_4Br_x$, $x \sim 0{,}3$) und mit einer mehrdimensionalen displaziven Modulation die metallischen Schichtkristalle TaS oder $TaSe_2$. Eine Modulation der Zusammensetzung zeigt $CuAu_{II}$, während einige Selten-Erde Metalle, $AuMn_2$ und Cr eine Modulation ihrer magnetischen Struktur aufweisen.

Einen ersten systematischen Überblick über die verschiedenen Grundtypen von "Gitterstörungen" und ihren charakteristischen Merkmalen im Beugungsbild gab Korekawa (1967) /8/, in dem er mit dem Ansatz von Dehlinger /3/ für die drei Grundtypen von Modulationen - longitudinale und transversale Verschiebungswelle sowie Dichtewelle - die abgebeugte Röntgenintensität im Fall einer sinusförmigen Gittermodulation berechnete. Böhm (1977) /9/ erweiterte die Theorie der Satellitenreflexe auf nichtsinusförmige Gittermodulationen und auf die Modulation der Besetzungswahrscheinlichkeit von Atomlagen, womit er die inkommensurabel modulierte Struktur von $NaNO_2$ beschrieb. Einen allgemeinen Strukturfaktor für n-dimensional modulierte Strukturen gibt Yamamoto (1982)/10/ sowohl für Dichtemodulationen (oder Zusammensetzungs~) als auch für displazive Modulationen an.

Durch den (teilweisen) Verlust der Translationssymmetrie bei der Modulation von Atomlagen ging ein Hauptmerkmal der kristallinen Festkörperphysik, nämlich die dreidimensionale Raumgruppensymmetrie, deren Konsequenzen für die physikalischen Eigenschaften und das Konzept der Brillouinzonen bedeutend sind, verloren. Dieses fundamentale Problem der Symmetrie inkommensurabler Strukturen löste de Wolff (1981)/11/ durch das Einführen von Überraumgruppen des (3+n)-dimensionalen Raumes im Fall einer

n-dimensionalen Modulation. Für eine eindimensionale Modulation gibt er die vollständige Liste der (3+1)-dimensionalen Überraumgruppen, die Auslöschungsregeln und Bravais-Gitter an.

Gegenstand der aktuellen Forschung ist auf dem Gebiet der displaziven Modulation der Übergang von einer inkommensurabel modulierten Phase in eine kommensurable Phase (IC-Übergang).
Gewöhnlich ist der Kristall bei einer genügend hohen Temperatur in einer unmodulierten Phase. Bei einer Temperatur T_i findet ein Phasenübergang (meist 2. Art) in eine inkommensurable Phase statt. Dynamisch ist dieser Übergang durch das "Weich"-Werden einer Gittermode (soft mode) an einem Punkt innerhalb der Brillouin-Zone (Abb.1) zu verstehen.

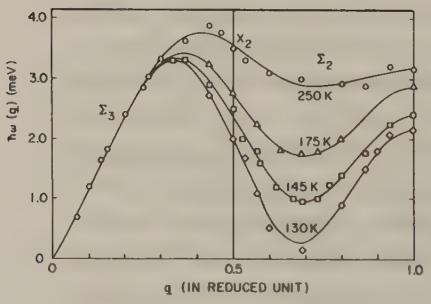


Abb.1: Temperaturabhängigkeit des "weich-"werdenden Phononenzweiges in K_2SeO_4 /12/

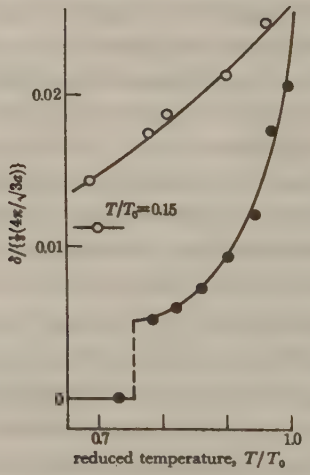


Abb.2: Temperaturabhängigkeit des Wellenvektors der Modulationswelle in $TaSe_2$(•) und $NbSe_2$(o) /13/

Wie bei allen Phasenübergängen 2. Art friert die soft mode-Amplitude unterhalb T_i ein, im Gegensatz zu einem kommensurablen Übergang ändert sich jedoch der Wellenvektor der eingefrorenen Welle im allgemeinen geringfügig mit der Temperatur. Bei $T_k < T_i$ schließlich rastet der Wellenvektor bei einem rationalen Bruchteil der Gitterperiode ein (Lock-in) (vgl. $TaSe_2$ in Abb.2) und ein Phasenübergang 1. Art (?) in die kommensurable Phase findet statt. Dieses Lock-in Verhalten wurde bei einer Reihe von Substanzen gefunden (z.B. K_2SeO_4, $TaSe_2$, TTF-TCNQ usw.). (Literaturhinweise findet man bei /14/)

Neueste Arbeiten zeigen, daß der Übergang zwar kontinuierlich erscheint, in Wirklichkeit jedoch aus einer unendlichen Anzahl eng beieinanderliegender Übergänge besteht, denen jeweils ein mit der Gitterperiode kommensurabler Wellenvektor zuzuordnen ist (q=Quotient großer ganzer Zahlen, z.B. $\frac{101}{300}, \frac{201}{600}, \frac{301}{900}, \ldots, \frac{1}{3}$).Die Kurve, welche die Änderung des Wellenvektors der inkommensurablen Struktur mit der Temperatur oder dem Druck beschreibt, zeigt einen konstanten Verlauf bei jedem kommensurablen Wellenvektor und weist somit die sogenannten "Teufelsleitern" (Devil's stair case)/15/ auf. Hinweise für die Existenz dieser "Teufelsleitern" wurden bei dem ferroelektrischen Molekülkristall $SC(NH_2)_2$ (Thiourea) gefunden /16/.

Ein weiteres Gebiet zunehmenden Interesses beinhaltet die Gitterdynamik inkommensurabel modulierter Phasen. Im Beispiel einer displaziven Modulation ruft die inkommensurable Modulationsperiode eine für die inkommensurable Phase spezifische Gitteranregung, die Phasonen und Amplitudonen (Abb.3) hervor, die lokale Fluktuationen in der Phase bzw. der Amplitude der Modulationswelle darstellen /17/.

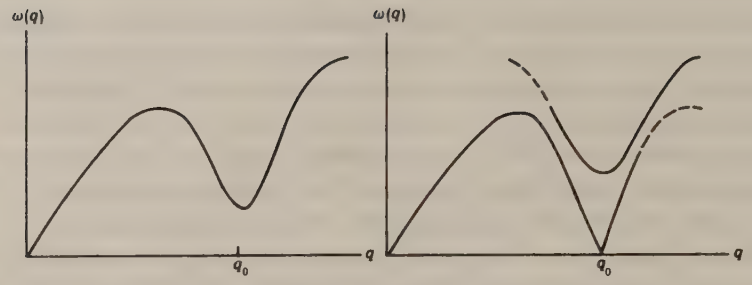


Abb.3: Schematische Darstellung der Dispersionsbeziehung einer Substanz, die einen inkommensurablen displaziven Phasenübergang erfährt /4/

Die linke Bildhälfte zeigt oberhalb T_o die "weiche" Mode mit einem Minimum bei q_o, rechts ist die in eine der akustischen Mode ähnliche "Phasonen"-Mode und der optischen Mode ähnliche "Amplitudon"-Mode unterhalb T_o aufgespaltene Mode dargestellt.
Neueste Experimente scheinen diese Theorien zu bestätigen /18, 19/.
In wieweit diese Moden Solitonen darstellen ist noch nicht geklärt, jedoch scheint dies für die langwelligen Moden zu gelten, da sich ihre Bewegung gut als nichtlineare Lösung der Sine-Gordon Gleichung beschreiben läßt /20/. Bei inelastischen Neutronenbeugungsexperimenten an dem eindimensionalen Antiferromagnet TMMC /21/ und an $CsNiF_3$ /22/ wurde ein zentraler Peak beobachtet, dessen Magnetfeld-, Temperatur- und $\underline{q}$-Abhängigkeit sich gut durch die Vorhersagen der Solitontheorie beschreiben lassen.

Bei der Klärung der Ursache für das "Weich"-Werden der Mode mit dem Wellenvektor $\underline{q}$ fand man /23/ als Folge des abschirmenden Effekts der Leitungselektronen eines Metalls auf die einzelnen Phononen einen engen Zusammen-

hang zwischen der Phononeninstabilität und einer simultanen Instabilität der Leitungselektronen nahe der Fermifläche, die Overhauser (1968)/24/ in einem mikroskopischen Bild, bei dem sich die Leitungselektronen frei in einem "jellium"-ähnlichen Medium bewegen sollen, vorausgesagt hatte.
Die Elektroneninstabilität fordert eine große Elektronensuszeptibilität $\chi_0(q)$, die begünstigt wird, wenn große Teile der Fermifläche um ein und denselben Wellenvektor $\vec{q}$ verschoben parallel verlaufen, d.h. wenn ein möglichst großflächiges Anschmiegen (Nesting) der Fermiflächen möglich ist. Bei dem eindimensionalen Leiter KCP bedeutet der Abstand der Fermiflächen von $q \approx 2K_F$ den geometrisch günstigsten Fall für die Ausbildung einer Ladungsdichtewelle (CDW), da das Anschmiegen über die gesamte Fermifläche erfolgen kann (Peierls-Instabilität).

Unter den Substanzen mit einer magnetischen Modulation ist das Übergangselement Chrom das am häufigsten untersuchte Element, wobei die Ursache der Modulation noch nicht vollständig geklärt werden konnte. Bei seiner mikroskopischen Betrachtungsweise zeigt Overhauser, daß für ein freies Elektronengas der Grundzustand in der Einteilchennäherung einen antiferromagnetischen Zustand mit einer durch den Wellenvektor q_m, der gleich dem Durchmesser des Fermisees $q_m \approx 2K_F$ ist, gegebene Periode darstellt /25/. Damit beschreibt er die magnetische Ordnung von Chrom unterhalb der Néel-Temperatur durch eine inkommensurable Spindichtewelle (SDW). Da die sich bei der Néel-Temperatur ordnenden Spins zu den Elektronen des Leitungsbands gehören, wird die magnetische Ordnung von Chrom als " i t i n e r a n t e l e c t r o n a n t i f e r r o m a g n e t i s m " bezeichnet /26/. Nach der Bandtheorie folgt die inkommensurable SDW durch das "Nesting" der Elektronfermifläche am Γ-Punkt der Brillouinzone an die Lochfermifläche am H-Punkt /27/. (Ein Bild der Fermiflächen von Chrom zeigt zur Veranschaulichung Abb.6)

Zum Verständnis des Phasenübergangs 1. Art von der ungeordneten in die magnetisch geordnete Phase am Néel-Punkt mußten zusätzliche harmonische Wellen der primären SDW berücksichtigt werden, wobei die ungeradzahligen Ordnungen wieder Spindichtewellen und die geradzahligen Ordnungen Ladungsdichtewellen darstellen /28/. Die Ladungsdichtewellen der "itinerant " Elektronen erzeugen dann ihrerseits auf Grund der Elektron-Phonon Kopplung eine Verzerrungswelle /29/.

Neben dem Modell des "itinerant electron antiferromagnetism", bei dem nur die Zustände nahe der "nesting"-Fermiflächen am Γ- und H-Punkt berücksichtigt werden, wird die magnetische Ordnung von Chrom in einem alternativen Modell diskutiert, bei dem alle 3d Zustände berücksichtigt werden /30/ und wobei als Folge der Neuverteilung der Elektronen zwischen den d Zuständen und dem s Band eine Gitterverzerrung postuliert wird.

Neben der nur von wenigen Autoren in Anlehnung an die Satellitentheorie von Holmium /31/, nach der die beobachteten Satelliten von asphärischen Komponenten der Ladungsverteilung erzeugt werden, vertretenen Theorie, standen sich diese beiden konkurrierenden Modelle als Ursache für die modulierte Struktur von Chrom gegenüber. Dabei wurde sowohl die "itinerant electron antiferromagnetism"-Theorie als auch die auf die Austauschstriktion beruhende Theorie durch entsprechende Experimente bestätigt.

1.2. Experimente zur magnetischen Ordnung in Chrom

Chrom ist ein Element der 3d-Übergangsmetalle (4. Periode) mit der Elektronenkonfiguration [Ar] $3d^5 4s^1$.
Am Néel-Punkt (T_N=312 K) geht Chrom durch einen Phasenübergang 1. Art /32/ vom paramagnetischen in den antiferromagnetischen Zustand über. Die Besonderheit des magnetisch geordneten Zustandes beruht darin, daß die magnetischen

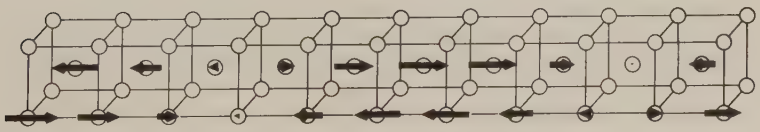
Momente zwar antiferromagnetisch angeordnet sind, ihre Größe jedoch nach der Art einer ebenen Welle variiert: Man spricht von einer i n k o m m e n s u r a b l e n S p i n d i c h t e w e l l e (SDW) .

Bei Neutronenbeugungsexperimenten zeigt sich die Erhöhung der Periode durch starke Satellitenreflexe an den Stellen $\underset{\rightarrow}{Q} = 2\pi\underset{\rightarrow}{H} \pm \underset{\rightarrow}{q}_m$, wobei $\underset{\rightarrow}{H}$ ein reziproker Gittervektor und $\underset{\rightarrow}{q}_m = (q_{1m}, q_{2m}, q_{3m})$ der Wellenvektor der inkommensurablen Spindichtewelle ist.

Infolge der kubischen Symmetrie von Chrom oberhalb T_N bilden sich beim Phasenübergang in den magnetisch geordneten Zustand 3 Domänentypen mit dem Wellenvektor $\underset{\rightarrow}{q}_m$ der SDW entlang einer der kubischen Hauptachsen aus und sind somit Anlaß zu 3 Paaren von Satellitenreflexen. Kühlt man einen Chromeinkristall in einem starken Magnetfeld (20-150 kG) durch den Néel-Punkt ab, kann sich nur eine Domänenart mit der Modulationsrichtung entlang des äußeren Magnetfeldes ausbilden: Der Chromeinkristall befindet sich in einem " single-$\underset{\rightarrow}{q}$ " Zustand.

Beim Eintritt in den magnetisch geordneten Zustand richten sich die magnetischen Momente senkrecht zum Wellenvektor $\underset{\rightarrow}{q}_m$ der SDW aus, die Polarisation der linearen Magnetisierungswelle ist transversal (Abb. 4).

Abb.4: Transversal polarisierte SDW (312 K $\geq$ T $\geq$ 120 K)



Bei T_{SF}= 120 K findet ein Spin-Flip Übergang 1. Art in eine longitudinal polarisierte Magnetisierungswelle statt (Abb.5).
Die Periode der inkommensurablen SDW beträgt ≈ 20 a.
Die beiden Temperaturen, bei denen eine Änderung in der magnetischen Ordnung eintritt (T_N, T_{SF}), zeigen sich auch durch anomales Verhalten einer Reihe physikalischer Eigenschaften wie z.B. der spezifischen Wärme, dem elektrischen Widerstand, der magnetischen Suszeptibilität, den elastischen Konstanten, den Gitterkonstanten usw. /33/.

Dieser Spindichtewellen-"itinerant electron antiferromagnetism" ist einzigartig unter den Metallen und unterscheidet sich von den Spindichtewellen der Selten-Erde Metalle (Tb, Dy, Ho), bei denen der Spin an jedem Gitterplatz konstant ist, während sich seine Richtung inkommensurabel ändert (Spinschraubenstruktur).

Experimentell gestützt wird die Bandtheorie des "itinerant electron antiferromagnetism" durch optische Messungen: Die periodische Magnetisierung bewirkt einen periodischen Term im Austauschpotential, der mit der Gitterperiode inkommensurabel ist. Dadurch werden Lücken in der Bandstruktur erzeugt (Abb.6), die bei Messungen der Infrarotreflektivität bestätigt wurden /34/.

Durch Zulegieren von Mn oder Re vergrößert sich das Elektron-Atomverhältnis, die Fermienergie wird höher. Sowohl die Vergrößerung der Elektronenfermifläche am Γ-Punkt als auch die Verkleinerung der Lochfermifläche am H-Punkt bewirken eine Vergrößerung des Wellenvektors $q_{\pm m}$, die bei Meßungen der optischen Absorption eine Verschiebung der Energie des Absorptionspeaks von 0,13 eV nach 0,39 eV ergab /66/.

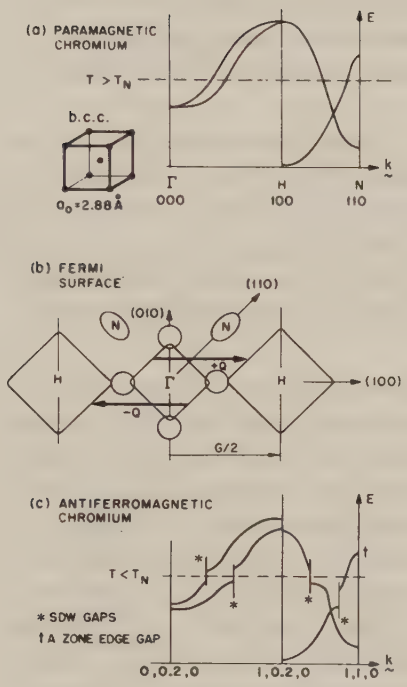


Abb.6:
Schematische Bandstruktur von Chrom in der paramagnetischen und antiferromagnetischen Phase /34/

Zusätzliche Energiebandberechnungen von Chrom und Chromlegierungen /z.B. 35/ bestätigen die Bedeutung der Fermiflächen unterschiedlicher Größe für die Ausbildung der inkommensurablen SDW durch das "Nesting" entsprechender Fermiflächen.

Weitere Bestätigung des Bandmodells, des "itinerant electron antiferromagnetism", ergaben Neutronenbeugungsexperimente an Chrompulver bzw. Chromeinkristallen, denen geringe Mengen anderer Übergangsmetalle zulegiert wurden. So verschiebt sich im Fall von Mn- oder Re-Zugaben die Néel-Temperatur zu höheren Temperaturen. Das magnetische Moment wächst an und der

Wellenvektor der SDW vergrößert sich, bis er bei einer Konzentration von ≈ 1% abrupt einrastet ($\vec{q}_m = \frac{2\pi}{a}$) (IC-Übergang) und die magnetische Struktur mit dem Grundgitter kommensurabel wird.
Auf der anderen Seite verkleinert die Zugabe von V oder Nb das Elektron-Atomverhältnis, die Néel-Temperatur wird niedriger und das magnetische Moment sowie der Wellenvektor der SDW werden kleiner /36/.
Bei sämtlichen zulegierten Übergangsmetallen verschob sich die Spin-Flip Temperatur T_{SF} zu niedrigeren Temperaturen.

Der Versuch, den Phasenübergang von der paramagnetischen Phase in die antiferromagnetische Phase durch hybridisierte Bandmodelle oder durch Annahme oktaedrischer bzw. sphärischer Fermiflächen zu berechnen, führt auf einen Übergang 2. Art. Der experimentell beobachtete Übergang 1. Art konnte erst duch die Annahme weiterer harmonischer Wellen ($n\vec{q}_m$, n>1) der primären SDW erklärt werden /28/, wobei die $(2n+1)\vec{q}_m$-Harmonischen wieder SDW sind, während die $2n\vec{q}_m$-Harmonischen Ladungsdichtewellen bilden. Die Ladungsdichtewelle induziert dann ihrerseits als Folge der Elektron-Phonon-Kopplung eine Verzerrungswelle /29/.

Zu einem neuen Verständnis der inkommensurablen SDW von Chrom führt die Theorie der A u s t a u s c h s t r i k t i o n von Teraoka /30/. Sie basiert auf der Alexander-Anderson-Moriya Theorie der Austauschwechselwirkung, nach der die magnetischen Momente von Atomen mit mehr als halb gefüllter d Schale ferromagnetisch (z.B. Fe, Co, Ni) und die magnetischen Momente von Atomen mit halb oder weniger als halb gefüllter d Schale (z.B. Mn, Cr) antiferromagnetisch koppeln /37/. Die Erweiterung dieses Modells durch die Berücksichtigung aller d Zustände führt zur Theorie der Austauschstriktion. Danach wird als Folge der Neuverteilung der Elektronen zwischen den d Zuständen und dem s Band dem Kristallgitter ein periodisches Span-

nungsfeld aufgeprägt, das als elastische Antwort des Gitters eine Verzerrungswelle verursacht,deren Periode die Hälfte der magnetischen Periode beträgt(vgl. Anh.G):

$$\lambda_v = 1/2\ \lambda_m$$

Aufgrund dieses Postulats wurde die Verzerrungswelle mit dem Wellenvektor $\vec{q}_v$ erstmals von Tsunoda /38/ bei Röntgenbeugungsexperimenten an Chromeinkristallen beobachtet (Abb. 7).

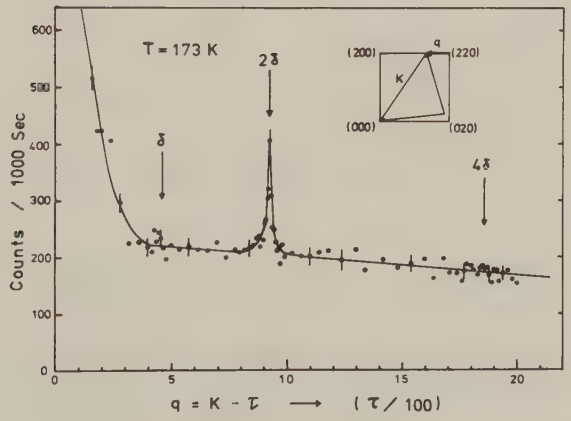


Abb. 7: Bei Röntgenbeugungsexperimenten erstmals beobachteter Satellit (2 2-2δ O) des Hauptreflexes (220) /38/ ($\delta \hat{=} q_m$; $2\delta \hat{=} q_v$)

Für die gesamte Arbeit wird folgende Schreibweise vereinbart:

$$q_v \triangleq q_{mechanisch} = 2q_m \hat{=} 2q_{magnetisch}$$

Auf der anderen Seite zeigten Neutronenbeugungsexperimente von Pynn /39/ an einem Chromeinkristall im "single-q" Zustand die nach der "itinerant electron" Theorie der inkommensurablen SDW geforderten harmonischen Wellen durch das Auftreten von Satellitenreflexen bei einem 2- und 3-fachen Wellenvektor q_m der primären SDW (Abb.8).

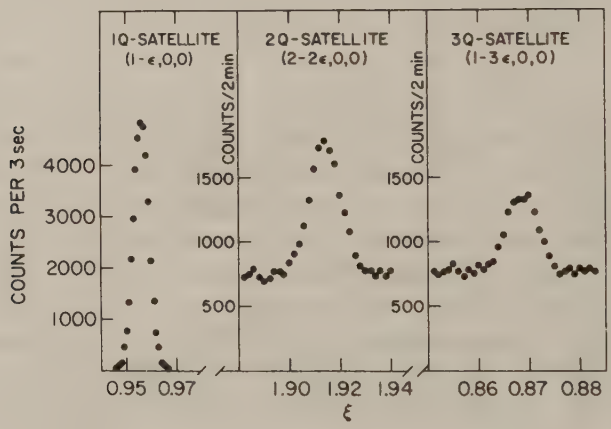


Abb. 8: Bei Neutronenbeugungsexperimenten beobachtete primäre SDW ($1Q=q_m$), zweite harmonische ($2Q=q_v$) und dritte harmonische ($3Q=3q_m$) Oberwelle /39/

Die $3q_m$-SDW zeigt bei Änderung der Temperatur die gleiche Polarisation wie die primäre Spindichtewelle.

Der Unterschied in der Amplitude der q_v-Welle gegenüber den Meßungen von Tsunoda wird durch eine zusätzlich vorhandene Ladungsdichtewelle interpretiert /39/.

Als Folge der magnetischen Ordnung in Chrom findet man demnach in der Röntgenbeugung Satellitenreflexe, die sowohl von einer Ladungsdichtewelle als auch von einer Verzerrungswelle (und deren Oberwellen) oder von dem Zusammenwirken beider Modulationsarten stammen können.

Aufgabe der vorliegenden Arbeit ist es, diese Frage zu klären und damit die im Röntgenbeugungsbild beobachtete Modulation von Chrom im Rahmen einer Satellitentheorie zu beschreiben.

Mit dem im ersten Teil der Arbeit beschriebenen hochauflösenden fokussierenden Einkristalldiffraktometer wurde durch ein dem Meßproblem angepaßtes sorgfältiges Optimieren des Meßplatzes eine gegenüber den andern Experimentatoren deutlich höhere Braggintensität bei wesentlich verbessertem Peak zu Untergrund Verhältnis erreicht.
Dadurch war es möglich, noch sehr kleine Intensitäten über dem Streuuntergrund zu beobachten und damit die von der Modulationswelle erzeugte Intensitätsverteilung zu messen. Die im zweiten Teil der Arbeit beschriebenen Experimente zur Bestimmung der Primärstrahlintensität dienten dazu, die gemessenen Intensitäten absolut zu eichen.
Durch die Diskussion der beobachteten Intensitäten der Haupt- und Satellitenreflexe mit den charakteristischen Merkmalen der für die verschiedenen Modulationstypen abgeleiteten Beugungsdiagrammen wird im dritten Teil der vorliegenden Arbeit die bei der Röntgenbeugung beobachtete Modulation von Chrom bestimmt.
Im Anhang werden die Grundlagen der Satellitentheorie zur Beschreibung der Modulation geschaffen sowie die Domänenverteilung im "multi-q" Zustand diskutiert. Die zur Berechnung der absoluten Intensitäten notwendigen Parameter wie Röntgenstrahldivergenzen, leuchtendes Kristallvolumen, Fokussierungsbedingung usw., die sich aus dem experimentellen Aufbau des Meßplatzes ergeben, bilden den letzten Teil des Anhangs.

2. PROBENPRÄPARATION

Der Chromeinkristall der Reinheit 4N5 wurde von Metals Research Ltd. England geliefert.
Um (hOO)- und (hhO)-Reflexe im symmetrischen Strahlengang beobachten zu können, wurden von der durch Laue-Rückstrahlaufnahmen justierten, zylindrischen Probe zufälliger Orientierung zwei Einkristalle maximaler Fläche mit einer [110]-Richtung (Probe 1) und einer [100]-Richtung (Probe 2) als Flächennormalen auf einer wassergekühlten Blattsäge abgeschnitten. Die Einkristallproben wurden durch Laue-Rückstrahlaufnahmen so auf einem Schleifkopf justiert, daß ihre Oberfläche parallel zu den (110)- bzw. (100)-Netzebenen geschliffen werden konnte. Als Schleifmittel dienten Korund, dann Bimssteinmehl, wobei Paraffinöl als Schmiermittel verwendet wurde. Zwischen den einzelnen Schleifphasen wurde die Probenoberfläche mit einer erwärmten 20% HCl Lösung bei einer Ätzrate von ungefähr 3µm/min geätzt. Das Polieren der Einkristalloberfläche erfolgte mit Diamantpasten abgestufter Feinheit.
Die beiden präparierten Chromeinkristalle wurden so auf zwei Miniaturgoniometerköpfe justiert, daß ihre [001]-Richtung mit der Goniometerkopfachse zusammenfiel.
Mit einer abschließenden Laue-Rückstrahlaufnahme wurde die Probenjustierung überprüft.
Durch Neutronenbeugungsexperimente wurde die Kristallqualität der Proben überprüft und das Auftreten der Spindichtewelle im magnetisch geordneten Zustand von Chrom für $T \lesssim T_N = 312$ K bestätigt.
Ein Reststück des Chromeinkristalls wurde durch eine Emissionsspektralanalyse auf metallische Verunreinigungen untersucht und deren Anteil zu < 1ppm bestimmt.

3. AUFBAU DES MESSPLATZES

Zur Bestimmung der modulierten Struktur von Chrom wird die Intensität der im Röntgenbeugungsdiagramm neben den starken Hauptreflexen zusätzlich auftretenden schwachen Satellitenreflexe gemessen. Um die großen Intensitätsunterschiede der eng beieinander liegenden Haupt- und Satellitenreflexe auflösen zu können (in einigen Experimenten konnten noch Intensitätsverhältnisse von $1:10^6$ nachgewiesen werden), sind an die Meßapparatur und deren Justierung besondere Anforderungen gestellt.

3.1. Das fokussierende Einkristalldiffraktometer

Für Röntgenbeugungsexperimente, bei denen sehr schwache Intensitäten in nächster Umgebung von Braggreflexen untersucht werden sollen, ist die Verwendung von Einkristallproben und streng monochromatischer Strahlung in Verbindung mit einer fokussierenden Beugungsgeometrie notwendig. Die verschiedenen Meßprobleme erfordern zudem eine Automatisierung des Meßplatzes sowie die Möglichkeit der automatischen Sammlung der Meßdaten und ihrer digitalen Auswertung. Diese Forderungen sind bei dem als Zweikreis-Diffraktometer ausgelegten fokussierenden Einkristalldiffraktometer erfüllt.

3.1.1. Prinzip und Beugungsanordnung

Die Verbindung eines Konkavkristallmonochromators mit einer Seemann-Bohlin-Anordnung erlaubt es bei asymmetrischer Probenanordnung Beugungsinterferenzen im gesamten Winkelbereich zu erfassen. Neben der hohen Auflösung, bedingt durch die Möglichkeit K_{α_1} und K_{α_2} zu trennen und durch die spektrale Reinheit, sind der geringe Streuuntergrund durch das Fehlen des Bremsspektrums und die hohe Reflexintensität bei Verwendung von großen ebenen Einkristallen als Proben weitere Vorteile des fokussierenden Einkristall-

diffraktometers. Auf Grund der großen Absorption von Chrom und der endlichen Präparatdicke werden die Meßungen in Reflexionsstellung der Einkristalle durchgeführt. Abb.9 zeigt den Strahlengang des fokussierenden Einkristalldiffraktometers in der Rückstrahlanordnung.

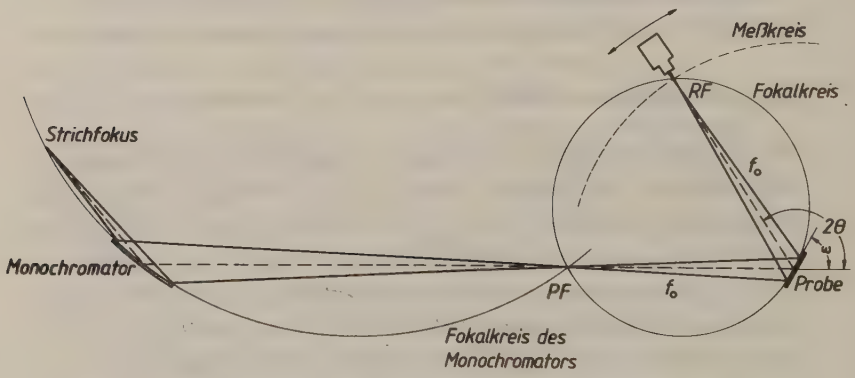


Abb.9: Beugungsanordnung des fokussierenden Einkristalldiffraktometers in Reflexionsstellung im symmetrischen Strahlengang ($\omega=2\theta/2$)

Der vom Strichfokus der liegenden Röntgenröhre divergent ausgehende, polychromatische Strahl trifft auf den Monochromater und wird als konvergentes Strahlenbündel abgebeugt. Um die Seemann-Bohlin Bedingung zu erfüllen, befindet sich die Probe im divergenten Strahl im Abstand f_o vom Primärstrahlfokus PF. Um der Bragg- und Spiegelbedingung für die verschiedenen möglichen Reflexe zu genügen, muß der Einkristall im Primärstrahl gedreht werden (ω-Drehung). Dadurch ändert sich im all-

gemeinen die Lage und der Radius des Fokalkreises und damit der Abstand f_R von der Probe zum Fokus des entsprechenden Reflexes (Abb.10).

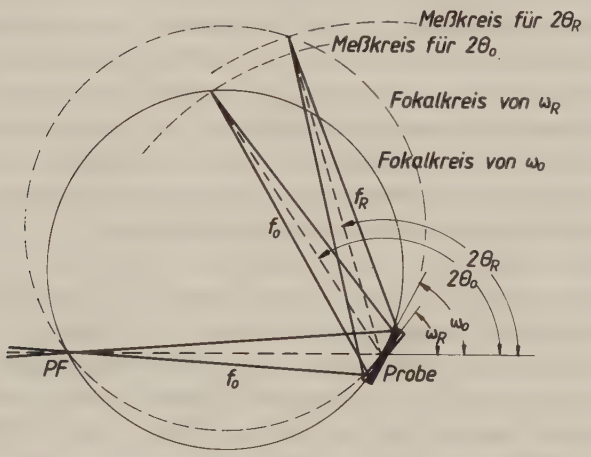


Abb.10: Fokussierung im allgemeinen Fall (ω_R, $2\theta_R$, f_R) und für den symmetrischen Fall ($\omega_o=2\theta_o/2$, $f_R=f_o$)

Der Fokalabstand f_R hängt vom Abstand f_o (Primärstrahl-fokus-Probe), von der Probenstellung gegenüber dem Primärstrahl (ω) und vom Beugungswinkel (2θ) ab. Im Anhang F wird seine Berechnung aus den die Beugungsebene aufspannenden Einheitsvektoren und aus f_o für beliebige, in der Beugungsebene liegende Reflexe beschrieben.
Nur für den Spezialfall des symmetrischen Strahlengangs ($\omega=2\theta/2$) ist $f_R=f_o$. Dies ist für die Reflexe (hkl) gerade dann der Fall, wenn die Kristalloberfläche und die reflektierende Netzebene (hkl) parallel sind.
Das integrale Reflexionsvermögen dieser Reflexe kann durch 1:2 Kopplung zwischen Kristalldrehung ω und Zählrohrdrehung 2θ gemessen werden, während alle übrigen Reflexe im ω- oder im 2θ-scan registriert werden.

3.1.2. Aufbau des fokussierenden Einkristalldiffraktometers

Der am Johansson-Monochromator abgebeugte, streng monochromatische Röntgenstrahl wird zur Abschirmung der Röntgenstrahlung und zur Verminderung der Luftstreuung in einem evakuierbaren Strahlrohr geführt. Eine gegenüber der Primärstrahlrichtung unter 45° in das Strahlrohr eingebrachte dünne Hostaphan®-Folie dient als Streufolie für das Monitorzählrohr. Auf die der Probe zugewandten Öffnung des Strahlrohrs sind zur Anpassung des Primärstrahlquerschnitts an die Kristallfläche Kristallblenden verschiedenen Querschnitts aufsetzbar.

Die an der Probe abgebeugten Röntgenstrahlen werden mit einem Meßzählrohr registriert, das fest auf einem Schlitten montiert ist. Um die Fokussierungsbedingung der verschiedenen Reflexe zu erfüllen, kann der Zählrohrschlitten auf dem Arm des 2θ-Kreises radial zur Diffraktometerachse bewegt werden.
Der Verminderung der Streustrahlung, der Luftstreuung und der Fluoreszenzstrahlung dient ein Kollimationssystem, das ebenfalls auf dem Zählrohrschlitten befestigt ist. Es besteht aus einem Strahlführungsrohr einstellbarer Länge mit austauschbarer Eintrittsöffnung, einer Halterung für Absorptionsfolien, der Zählrohrblende und einem Sollerkollimator (vgl. Abb. D3). Die aus dem Blendensystem folgenden horizontalen und vertikalen Divergenzen werden im Anhang D für fokussierte bzw. für isotrop gestreute Röntgenstrahlung berechnet.

3.2. Tieftemperaturteil

Die Kühlung der Probe erfolgt durch einen nach dem Gifford McMahon-Prinzip arbeitenden einstufigen "closed-cycle" Kühler. Das mit einem Kompressor auf etwa 17 atm komprimierte He-Gas kühlt bei seiner Expansion den Kühlfinger des mit dem Kompressor über flexible Zu- und Rückleitung

verbundenen Kühlkopfes. Die Goniometerkopfaufnahme, die zur Regelung der Temperatur mit einer Heizwicklung versehen ist, befindet sich am oberen Ende des Kühlfingers und kühlt die Probe durch thermische Leitung. Der Kühlkopf ist von unten so an den Röntgenkryostaten angeflanscht, daß die Achse des Kühlfingers die Drehachse des ω-Kreises bildet.
Mit Strahlungsschildern zur Verminderung der thermischen Strahlung und He-Austauschgas im Probenraum wurde eine Temperaturkonstanz von $\sim$1 K erreicht.
Eine Temperaturänderung kann in geringem Maße durch Verringern der Kühlleistung des "closed-cycle" Kühlers bei Änderung des He-Ladedrucks und durch Regelung des Heizstromes über einen PID-Regler erreicht werden. Dazu wurde die Temperatur über einen Pt-Widerstand zwischen der Heizwicklung und dem Goniometerkopf bestimmt. Die Temperatur der Probe wurde ebenfalls über einen Pt-Widerstand direkt am Goniometerkopf gemessen. Der Temperaturvergleich zwischen den beiden Meßstellen gibt eine Abschätzung für den oberen Grenzwert des Temperaturgradienten in der Probe.

3.3. Diffraktometersteuerung

Die Bewegung des ω- und des 2θ-Kreises des Diffraktometers erfolgt durch zwei Schrittmotoren, die von einem Mikroprozessor angesteuert werden. Dabei können die beiden Motoren einzeln oder aber in 1:2 Kopplung für einen kontinuierlichen oder Schritt-Modus eingesetzt werden. Das Steuerprogramm wird über einen Lochstreifen eingegeben und enthält je nach Betriebsart Start- und Zielwinkel sowie die Winkelgeschwindigkeit bzw. Startwinkel, Schrittzahl, Schrittweite und Meßzeit, wobei der Startimpuls für den nächsten Schritt sowohl nach einer bestimmten Meßzeit (Zeitsteuerung) als auch nach einer bestimmten Monitorzählrate (Monitorsteuerung) erfolgen kann.

3.4. Meß- und Nachweiskette, Datenerfassung

Die an der Probe gestreute Röntgenstrahlung wurde in einem Proportionalzählrohr nachgewiesen. Zur nicht energiedispersiven Wellenlängendiskriminierung und zur Bestimmung der Primärstrahlintensität wurde ein Halbleiterdetektor verwendet.
Die Einstellung des Energiefensters am Einkanaldiskriminator und deren laufende Überprüfung während der langen Meßperioden erfolgte mit einem Vielkanalanalysator in Koinzidenzschaltung.
Um Instabilitäten in der Hochspannungsversorgung der Röntgenröhre auszugleichen, wurde im Schritt-Modus alternativ zur Vorgabe einer bestimmten Meßzeit durch den Zeitgeber mit Monitorsteuerung gemessen, wobei in einer zweiten Meßkette ein Szintillationszählrohr als Monitorzähler verwendet wurde (vgl. Abb.11).
Zur Verbesserung der Zählstatistik und um Schwankungen in der Zählrohrhochspannung zu kompensieren, wurden die zu erwartenden geringen Intensitäten der Röntgensatelliten im Schritt-Modus nicht mit hohen Monitorzählraten (lange Meßzeiten) pro Schritt registriert, sondern durch mehrere Messungen bei kleinen Monitorzählraten.
Die in den Dateien der Einzelmessungen enthaltenen Meßwerte wurden mit dem Programm KADD aufsummiert. Die Linienform konnte mit dem Programm W12 durch Gauß- oder Lorentzkurven angepaßt und nach Peaklage, Halbwertsbreite und integraler Intensität ausgewertet werden. Ein besonderer Vorzug von W12 ist die Möglichkeit, auch asymmetrische Gauß- oder Lorentzkurven anzupassen.
In Abb.11 ist schematisch der gesamte Aufbau des Meßplatzes dargestellt.

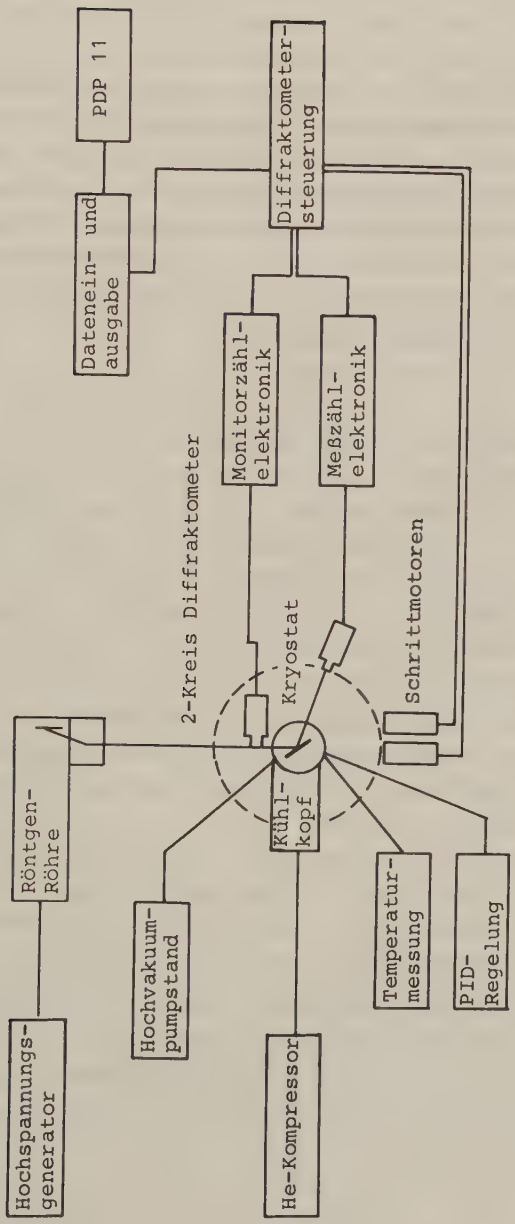


Abb.11: Schematischer Aufbau des gesamten Meßplatzes

4. OPTIMIERUNG DES MESSPLATZES BEZÜGLICH DES MESSPROBLEMS

Um die in Röntgen- und Neutronenbeugungsexperimenten /38, 39/ bei dem Wellenvektor $\vec{q}_v$ beobachteten Satelliten mit einer Satellitentheorie beschreiben zu können, werden die mit dem fokussierenden Einkristalldiffraktometer meßbaren Intensitäten den nach den verschiedenen Modellen berechneten Röntgenstrahlinterferenzen gegenübergestellt.

Für die Messungen wurden eine 1,5 kW Cu- und eine 2,0 kW Mo-Feinfokusröntgenröhre verwendet.
Die größere Wellenlänge der charakteristischen Cu-Strahlung ($\lambda_{CuK_{\alpha_1}}$ = 1,54051 Å) beschränkte zwar die Zahl der beobachtbaren Hauptreflexe, dafür wies das Proportionalzählrohr eine höhere Nachweiswahrscheinlichkeit für Cu-Röntgenquanten von ≈ 65% gegenüber Mo-Röntgenquanten von ≈ 17% auf. Dies begünstigte die Suche nach verschiedenen Ordnungen von Röntgensatelliten erlaubter Hauptreflexe sowie die Suche nach Satelliten von Hauptreflexen, die infolge der Auslöschungsregeln für das kubisch innenzentrierte Gitter von Cr verboten sind.

Die Verwendung der Mo-Röntgenröhre ermöglichte es, eine größere Zahl von Hauptreflexen in Reflexionsstellung zu bringen und damit die Satelliten von Hauptreflexen verschiedener Ordnung zu messen. Der Nachteil der geringeren Intensität ($I \sim \lambda^3$) gegenüber der Cu-Strahlung (1:10,3) wurde dabei durch das größere leuchtende Kristallvolumen (8,5:1) (vgl. Anhang E), gleicher Primärstrahlquerschnitt am Probenort vorausgesetzt, annähernd kompensiert.

Um die Intensität der Röntgensatelliten absolut angeben zu können, wurde die Primärstrahlintensität der Mo-Röhre aus der mit einem Ge-Festkörperdetektor gemessenen inelastisch inkohärenten Comptonintensität bestimmt.

Zur Verbesserung der Meßapparatur in Bezug auf die Beobachtung von sehr schwachen Intensitäten in nächster Umgebung von starken Hauptreflexen diente der direkte Vergleich mit den Meßergebnissen von Tsunoda /38/. Nach dem die mit CuK_{α_1}-Strahlung beim Wellenvektor $\vec{q}_v$ beobachteten Röntgensatelliten des Hauptreflexes (220) ein Peak zu Untergrund Verhältnis von 2:1 aufwiesen (vgl. Abb.7), wurde zunächst versucht, dieses mit der fokussierenden Methode zu verbessern. Dabei stellte sich zunächst das Problem, eine möglichst hohe Primärstrahlintensität bei einem Minimum an Untergrund zu erreichen.

4.1. Optimierung der Primärstrahlintensität

Um am Ort der Probe eine hohe Leistungsdichte streng monochromatischer CuK_{α_1}-Strahlung zu erzielen, wurden drei verschiedene Johansson-Monochromatoren getestet. Als Maß der Primärstrahlintensität diente die am Cr-Einkristall (Probe 1) im symmetrischen Strahlengang reflektierte Intensität des Hauptreflexes (220). Dabei ergab sich für einen Si-Monochromator (80mm/220mm) gegenüber einem SiO_2-Monochromator (80mm/120mm) bzw. einem Ge-Monochromator (80mm/220mm) die höchste Intensität bei völliger Trennung der CuK_{α_1}-K_{α_2} Wellenlängen.

4.2. Verminderung des Untergrunds und der Fluoreszenzstrahlung

Nach dem Abkühlen des Cr-Einkristalls auf 50 K folgte für den Satelliten (2 2-q_v 0) des Hauptreflexes (220) ein Intensität zu Untergrund Verhältnis von 4:1. Zur Verminderung des Untergrunds, der sich aus Luftstreuung, Streustrahlung von Blenden und dem Kryostatenfenster, thermisch diffuser Streuung (TDS), Comptonintensität und Fluoreszenzstrahlung zusammensetzt, wurde zunächst die Röntgenstrahlbegrenzung optimiert.

Die Mittelblende und die Streublende am Monochromator wurden auf eine maximale Intensität des Hauptreflexes bzw. des Satelliten bei geringstem Untergrund abgestimmt. Dazu wurden verschiedene Kristall- und Zwischenblenden sowie Sollerkollimatoren mit einer maximalen Divergenz von $\Delta = 2{,}25^{\circ}$ bzw. $\Delta = 1{,}35^{\circ}$ verwendet und die Länge des Strahlführungsrohres im abgebeugten Strahl verändert.
Eine Bleihaube über dem Monochromatorgehäuse absorbierte die Streustrahlung des Monochromators. Eine Blei-Abschirmung an der Außenseite des Kryostaten mit einem Fenster für den abgebeugten Röntgenstrahl verminderte die von der Cu-Strahlung angeregte isotrope Fluoreszenzstrahlung des Chromkristalls. Zusätzlich wurde das Zählrohr mit einem 1cm dicken Bleimantel versehen. Die kosmische Strahlung, die bei stichprobenartigen Messungen über drei Jahre hinweg zwischen 7 Imp/min. und 21 Imp/min. schwankte, konnte damit nicht verringert werden.
Mit diesen Verbesserungen wurde der (2 2-q_v O) Satellit mit einem Intensität zu Untergrund Verhältnis von 6:1 gemessen.

Um die trotz enger Kollimation und Bleiabschirmung vom Zählrohr registrierte Chromfluoreszenzstrahlung zu verringern, wurden verschiedene Möglichkeiten der Wellenlängendiskriminierung erprobt.

1) Impulshöhenanalyse
Bei der Impulshöhenanalyse wird das Energiefenster ΔE am Einkanaldiskriminator zu höheren Energieschwellen E_L verschoben. Aus der Impulshöhenverteilung der Abb.12 folgt, daß bei völliger Diskriminierung der Chromfluoreszenzstrahlung auf Grund der Überlappung der Energieverteilungen der CrK_α-Fluoreszenzstrahlung und der CuK_α-Strahlung ein Teil der Cu-Strahlung abgetrennt wird, was zu einer Verminderung der Hauptreflex- und Satellitenintensität führt.

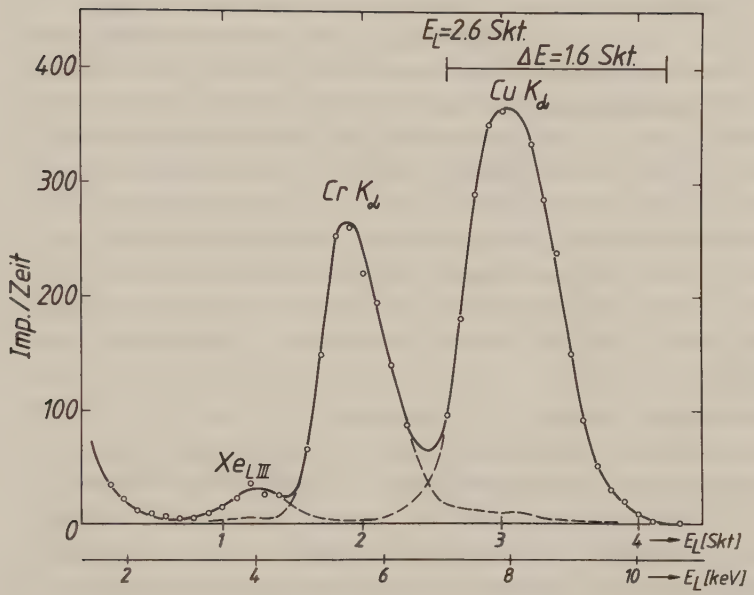


Abb.12: Mit dem Proportionalzählrohr aufgenommene Impulshöhenverteilung der an der Chromprobe gestreuten K_{α_1}-Strahlung der Cu-Röhre

Um die günstigste Energieschwelle E_L für das Intensitätsverhältnis von Satellit zu Untergrund zu ermitteln, wurde für verschiedene Werte der Schwelle E_L zuerst die Intensität im Maximum des Satellitenreflexes gemessen. Danach wurde der Kristall zur Unterscheidung der Chromfluoreszenzstrahlung und der elastisch gestreuten Strahlung um 1° aus der Reflexionsstellung, d.h. aus der maximalen Anregung des Satelliten verdreht und dann die Intensität bestimmt.

Für die Diskriminatoreinstellung E_L=2,6 Skt ($\hat{=}$7 keV) und ΔE=1,6 Skt ($\hat{=}$3,5 keV) konnte dabei das Intensität zu Untergrund Verhältnis des Satelliten (2 2-q_v O) durch elektronische Diskriminierung auf 7:1 verbessert werden.

2) Ge-Festkörperdetektor
Auf Grund seiner hohen Energieauflösung (vgl. Abb.26) wurde ein Ge-Festkörperdetektor zur elektronischen Diskriminierung der Chromfluoreszenzstrahlung verwendet, wobei die gesamte Energieverteilung der CuK_α-Linie mit dem Einkanaldiskriminator von der Fluoreszenzstrahlung abgetrennt werden konnte. Da der Festkörperdetektor infolge seines großen Gewichtes nicht auf den 2θ-Arm des fokussierenden Einkristalldiffraktometers montiert werden konnte, waren keine Meßungen der integralen Intensitäten der Satelliten im θ-2θ-scan möglich. Außerdem ergab sich ein schlechteres Peak zu Untergrund Verhältnis.

3) Kristallanalysator im abgebeugten Strahl
Eine weitere Möglichkeit, die in Richtung der Braggreflexe bzw. Satelliten abgestrahlte Chromfluoreszenzstrahlung zu eliminieren, ergab eine energiedispersive Methode durch die Verwendung eines Analysatorkristalls. Dazu wurde ein ebener, pyrolytischer Graphit-Einkristall in eine Halterung eingesetzt, die auf dem beweglichen Zählrohrschlitten zwischen dem Sollerkollimator und dem Proportionalzählrohr eingebaut werden konnte (Abb.13).

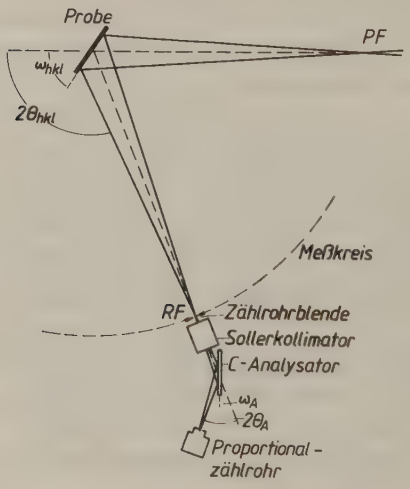


Abb.13:
Strahlengang der energiedispersiven Meßanordnung

Der Analysatorkristall wurde in seiner Halterung über ein Schneckengetriebe um eine zur Diffraktometerachse parallele Achse um den Winkel ω_A gegenüber dem am Chromeinkristall gebeugten Röntgenstrahl gedreht. Mit dem auf dem Zählrohrschlitten auf den Beugungswinkel des (0002) Reflexes für CuK_{α_1}-Strahlung im z-förmigen Strahlengang herausgedrehten Proportionalzählrohr wurde die an der Chromeinkristallprobe elastisch gestreute Intensität registriert, während der Graphitanalysator in der Kristallstellung ω_{0002} für die Chromfluoreszenzstrahlung nicht in Reflexionsstellung war.
Diese Meßanordnung erlaubte es, bei großem Energiefenster ΔE am Einkanaldiskriminator (z.B. E_L = 2,0 Skt ($\hat{=}$ 5,7 KeV) und ΔE=2,4 Skt ($\hat{=}$ 5,2 KeV) in Abb.12) die gesamte Breite der der Cu-Linie entsprechenden Impulshöhenverteilung des Proportionalzählrohrs zu registrieren.
Um die gesamte Divergenz des am Chromeinkristall gebeugten Röntgenstrahls auszunutzen, wurden Graphitanalysatorkristalle mit verschiedener Mosaikbreite ($0,4^o$ und $1,2^o$) eingesetzt.

Die Verwendung des Festkörperdetektors und des Analysators ergaben gegenüber der elektronischen Unterdrückung der Chromfluoreszenzstrahlung zwar eine höhere Absolutintensität, jedoch konnte das dort erhaltene Peak zu Untergrund Verhältnis des (2 2-q_v 0) Satelliten von 7:1 nicht erreicht werden.

Die weiteren Meßungen mit der charakteristischen CuK_{α_1}-Strahlung wurden daher bei elektronischer Unterdrückung der Chromfluoreszenzstrahlung und mit dem Proportionalzählrohr durchgeführt.

Das von Tsunoda bei Röntgenbeugungsexperimenten beobachtete Intensität zu Untergrund Verhältnis des (2 2-q_v 0) Satelliten von 2:1 (vgl. Abb.7) konnte damit mit dem fokussierenden Einkristalldiffraktometer auf 7:1 (vgl. Abb.15) verbessert werden.

5. MESSUNG DER ROENTGENSATELLITEN

5.1. Meßung der Satelliten $2\pi\vec{H}\pm\vec{q}_v$ erlaubter Hauptreflexe

Mit dem Chromeinkristall (Probe 1) konnten die Reflexe (110) und (220) im symmetrischen Strahlengang in θ-2θ-Radialscan und die Reflexe (310) und (130) sowie die in der Beugungsebene liegenden Satelliten dieser Hauptreflexe im ω- oder 2θ-scan gemessen werden.

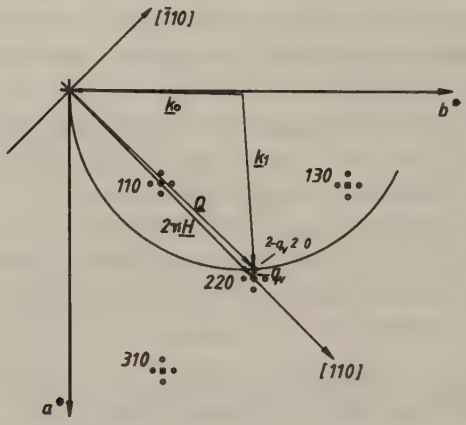


Abb.14: Ewaldkonstruktion für den $(2-q_v 2 0)$ Satelliten

Abb.14 zeigt die mit der CuK_{α_1}-Strahlung beobachtbaren Haupt- und Satellitenreflexe und die Ewaldkonstruktion für den Satelliten $(2-q_v\ 2\ 0)$.

Die Reflexionsstellung der Hauptreflexe und Satelliten wurde durch aufeinanderfolgende ω- und 2θ-scans bestimmt. Um den linearen Zählbereich des Proportionalzählrohrs nicht zu überschreiten, wurde der Primärstrahl bei der Meßung der Hauptreflexe durch Absorptionsfolien geschwächt.

Die aus 10 2θ-scans aufsummierten Intensitätsprofile der Hauptreflexe (220) und (130) und der sie begleitenden Satelliten sind in Abb.15 dargestellt.

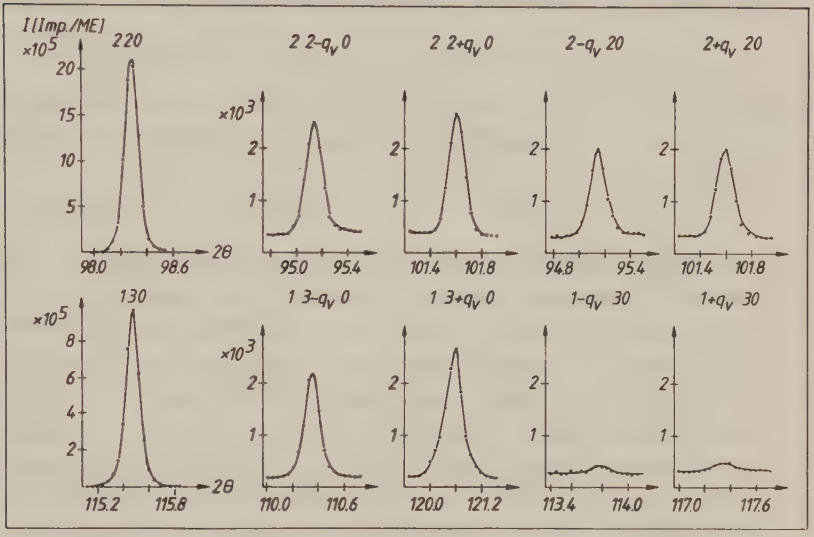


Abb.15: Intensitätsprofile der Hauptreflexe (220) und (130) und ihrer Satelliten bei 47 K

Die 2θ-scans wurden mit Monitorsteuerung bei einer 35-fachen Meßzeit für die Satelliten gegenüber den Hauptreflexen bei einer Temperatur von 47 K durchgeführt. Für den Satelliten (1 3-q_v 0) ergibt sich dabei ein Intensität zu Untergrund Verhältnis von 13:1.

In Tabelle 1 sind die bei der Anpassung der Meßkurven durch Gaußkurven mit dem Fitprogramm W12 errechneten integralen Intensitäten aus den ω- und 2θ-scans der Haupt- und Satellitenreflexe zusammengefaßt. Dabei stellen die Intensitätswerte der ω-scans die Summe von 4 mit einer 1,6mm Zählrohrblende durchgeführten ω-scans und die der 2θ-scans die Summe von 10 mit einer 0,2mm Zählrohrblende durchgeführten 2θ-scans dar. Die Skalierung der Braggreflexe wurde bezüglich der Absorptionsfolien korrigiert und der Meßzeit der

Satelliten angepaßt. Zusätzlich enthält die Tabelle die Fokalabstände der Braggreflexe und der Satelliten (für ihre Berechnung siehe Anhang F).

h	k	l	f mm	Integrale Intensität Imp ω -scan	2θ-scan
2	2	0	105 (=f_o)	329 652 964	511 270 941
2	2-q_v	0	100	10 560	16 271
2	2+q_v	0	109	10 786	17 792
2-q_v	2	0	110	8 299	12 417
2+q_v	2	0	101	9 965	13 739
1	3	0	202	118 935 800	228 351 376
1	3-q_v	0	213	14 551	15 034
1	3+q_v	0	190	14 616	20 366
1-q_v	3	0	219	871	1 276
1+q_v	3	0	187	1 809	1 738
3	1	0	55	878 829 399	976 657 854
3	1-q_v	0	50	3 396	5 061
3	1+q_v	0	59	4 289	10 176
3-q_v	1	0	52	22 253	61 888
3+q_v	1	0	58	34 157	82 398

Tab.1: Aus den Meßkurven angepaßte integrale Intensitäten der in ω- und 2θ-scans bei T=47 K gemessenen Reflexe (220), (130) und (310) und der sie begleitenden Satelliten.

5.2. Suche nach höheren Ordnungen der Satelliten $2\pi\vec{H}\pm n\vec{q}_v$

Für die Röntgensatelliten, die von höheren harmonischen Komponenten der Modulationswelle im reziproken Raum an den Stellen $2\pi\vec{H}\pm n\vec{q}_v$ (n=2, 3, ..) erzeugt werden, gibt Tsunoda /38/ eine Abschätzung der Intensität von $I(n\vec{q}_v) \simeq {}^1/_{n^4}$ (n=1, 2, ..) an. Danach würde man für das Verhältnis der Intensität der Satelliten, die von der zweiten harmonischen Komponente der Modulationswelle herrühren, zur Intensität der Satelliten, die der 1.harmonischen Komponente zuzuordnen sind, einen Wert von $I(2\vec{q}_v) / I(\vec{q}_v) = {}^1/_{16}$ erwarten.

Abb.16 zeigt die Summe von 4 ω -scans des Satelliten (1 3-q_v 0), die durch Monitorsteuerung mit einer Meßzeit von 1 min pro Stützpunkt registriert wurden. Bei dem berechneten Beugungswinkel und Fokalabstand des Satelliten (1 3-2q_v 0) wurde eine Serie von 9 ω-scans mit einer Gesamtmeßzeit von 100 min pro Stützpunkt durchgeführt. Die Summe dieser sich über 7 Tage erstreckenden ω -scans ist ebenfalls in Abb.16 eingezeichnet, wobei der erwartete ω-Wert durch einen Pfeil gekennzeichnet ist. Beide Meß - reihen erfolgten mit einer 1,6 mm Zählrohrblende bei einer Temperatur von 47±1 K . Um die Größenverhältnisse zu verdeutlichen, wurde die Intensität des Satelliten (1 3-q_v 0) auf die Meßzeit des Satelliten (1 3-2q_v 0) umgerechnet.

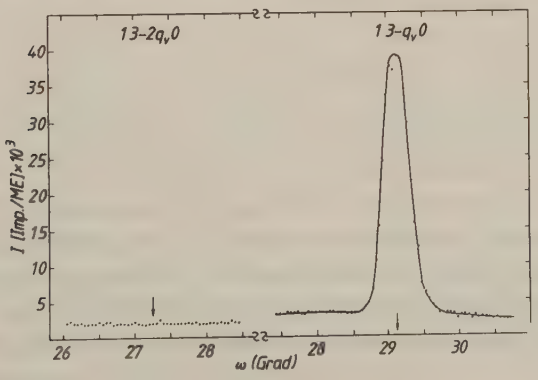


Abb.16: Summe der ω-scans der Satelliten (1 3-q_v 0) und (1 3-2q_v 0)

Nach der Abschätzung von Tsunoda müßte der (1 3-2q_v 0) Satellit mit einer Peakintensität von 2200 Imp/Monitoreinheit deutlich über dem Untergrund liegen, dessen 3σ-Intervall 150 Imp/ME beträgt.

Infolge der Orientierung der Chromprobe 1 waren in der Reflexionsstellung des Satelliten (2 2-q_v 0) auch die in Richtung der -$\underset{\sim}{b}$ -Hauptachse zu erwartenden Satelliten, die zu einem $1\underset{\sim}{q}_m$, $3\underset{\sim}{q}_m$ und $2\underset{\sim}{q}_v=4\underset{\sim}{q}_m$ -Wellenvektor der magnetischen Spindichtewelle gehören, in Reflexionsstellung. Im Experiment wurden 10 2θ-scans in der Reflexionsstellung des Satelitten (2 2-q_v 0) bei einem mittleren Fokalabstand f für die 4 erwarteten Satelliten mit einer 0,2mm Zählrohrblende durch Monitorsteuerung bei der Temperatur T=48 K durchgeführt. In der Summe dieser 2θ-scans sind die Peaklagen der erwarteten Satelliten in Abb. 17 durch Pfeile gekennzeichnet.

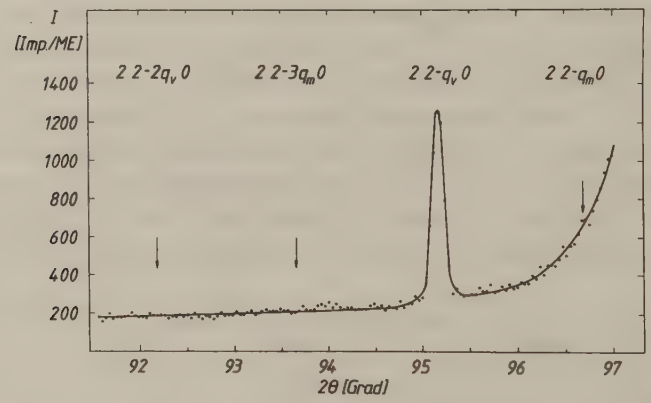


Abb.17: Summe von 2θ-scans bei den Satelliten (2 2-q_m 0), (2 2-q_v 0), (2 2-3q_m 0) und (2 2-2q_v 0) bei 47 K

Für den Versuch, die höheren harmonischen Komponenten der Modulationswelle in einem θ-2θ-Radialscan zu beobachten, wurde die zweite präparierte Chromeinkristallprobe (Probe 2), deren Oberfläche parallel zu den (100)-Netzebenen ist, auf das Diffraktometer justiert. Dadurch konnte der Reflex (200) sowie die in $\underset{\sim}{a}^*$ -Richtung liegenden Satelliten

$(2\pm q_v\ 0\ 0)$ im symmetrischen Strahlengang beim Fokalabstand f_o gemessen werden. Abb.18 zeigt den θ-2θ-Radialscan des $(2+q_v\ 0\ 0)$ und des $(2+2q_v\ 0\ 0)$ Satelliten. Die Intensitätsskala des $(2+q_v\ 0\ 0)$ wurde der Meßzeit des $(2+2q_v\ 0\ 0)$ Satelliten angepaßt.

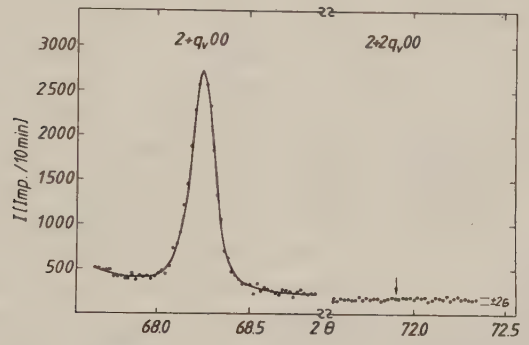


Abb.18: Summe von θ-2θ-scans der Satelliten $(2+2q_v\ 0\ 0)$ und $(2+q_v\ 0\ 0)$ bei 47 K

Auch für dieses Experiment müßte nach der Abschätzung von Tsunoda der $(2+2q_v\ 0\ 0)$ Röntgensatellit mit einer Peakintensität von 150 Imp/ME signifikant über dem 2σ-Untergrund von 27 Imp/ME liegen.

5.3. Meßung der Satelliten verbotener Hauptreflexe

In einer weiteren Meßreihe wurde versucht, Satelliten bei Hauptreflexen zu beobachteten, die auf Grund der Raumzentrierung des kubischen Gitters von Chrom ausgelöscht sind. Bei dem berechneten Beugungswinkel und Fokalabstand des Satelliten $(2\ 3\text{-}q_v\ 0)$ wurden 12 ω-scans und in der berechneten ω-Stellung der Probe 13 2θ-scans mit Monitorsteuerung bei einer Meßzeit von 100sec pro Stützpunkt durchgeführt. Die Summe der Meßungen ist für den ω- und den 2θ-scan in Abb.19 dargestellt. In die Diagramme mit eingezeichnet sind die 2σ-Intervalle der Meßpunkte.

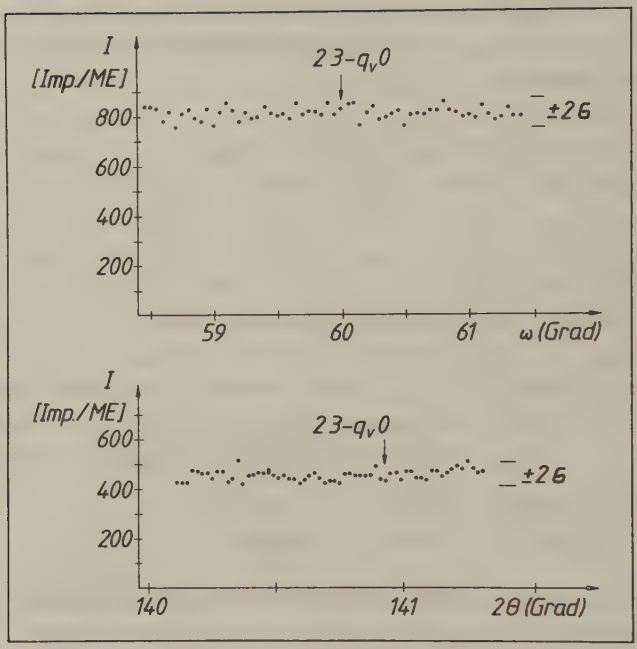


Abb.19: Summe von ω- und 2θ-scans des Satelliten (2 3-q_v 0)eines verbotenen Hauptreflexes

In einem bei T=46 K und T=150 K durchgeführten θ-2θ-Radialscan konnte auch für die Satelliten (1-q_v 0 0) und (1+q_v 0 0) keine Intensität beobachtet werden.

5.4. Meßung der Satelliten von Hauptreflexen verschiedener Ordnung

Mit den bisherigen Röntgenmessungen wurde ein Überblick über die im reziproken Raum beobachtbaren Satelliten geschaffen. Die nun folgenden Messungen dienen dazu,

diese Satelliten sowie die Hauptreflexe im Temperaturbereich von 40 K ≤ T ≤ 350 K zu registrieren. Aus den Meßdaten werden dann neben dem Temperaturverlauf der Gitterkonstanten und des Wellenvektors insbesondere die integralen Intensitäten bestimmt.

Um die Satelliten von Hauptreflexen verschiedener Ordnung beobachten zu können, wurde die Cu-Röhre durch die Mo-Röhre ersetzt. Als Monochromator diente ein fokussierender Si-Monochromator (a=100mm, b=180mm). Da sich die MoK_{α_1}-Linie nur bei einer starken Intensitätseinbuße von der MoK_{α_2}-Linie trennen ließ, wurde der Si-Einkristall auf maximale Intensität der K_{α_1}-Linie justiert. Die im Beugungsdiagramm zusätzlich auftretende Linie, die auf die MoK_{α_2}-Strahlung zurückzuführen war, wurde entsprechend berücksichtigt.
Die Einstellung des Energiefensters am Einkanaldiskriminator gestaltete sich bei der Verwendung der Mo-Strahlung unproblematisch, da die MoK_{α}-Röntgenquanten mit der Energie E (MoK_{α}) = 17,444 KeV gut von der Chromfluoreszenzstrahlung mit E (CrK_{α}) = 5,412 KeV zu trennen waren.

Die Reflexion der monochromatischen MoK_{α}-Strahlung erfolgte an der Chromprobe 2, so daß die Reflexe (200), (400) und (600) sowie die in Richtung der $\underline{a}^*$-Achse liegenden Satelliten ($2\pm q_v$ 0 0), ($4\pm q_v$ 0 0) und ($6\pm q_v$ 0 0) im symmetrischen Strahlengang durch θ-2θ-Radialscans gemessen werden konnten (vgl. Abb.20).

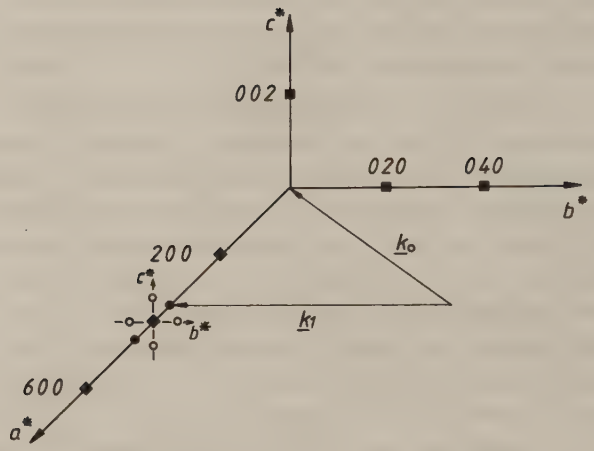


Abb.20: Beugungsgeometrie für den parallel zu den (100)-Netzebenen geschliffenen Chromeinkristall (■ ≙ Hauptreflex, O ≙ Satellitenreflex, wobei ● die im θ-2θ-scan gemessenen Satelliten ($4\pm q_v$ O O) kennzeichnet)

Abb.21 zeigt die bei verschiedenen Temperaturen im θ-2θ-scan gemessenen Satelliten ($2\pm q_v$ O O) und nur für eine Temperatur den skalierten Hauptreflex (200). Die durchgezogenen Kurven stellen die angepaßten Gaußkurven dar. Sowohl die Peakhöhe der Satelliten als auch der Wellenvektor der Modulationswelle nehmen mit steigender Temperatur ab. Als Folge der starken Zunahme der thermisch diffusen Streuung (TDS) treten die Satelliten bei der Temperatur T = 308 K (T/T_N=1,032) nicht mehr aus dem Untergrund hervor.

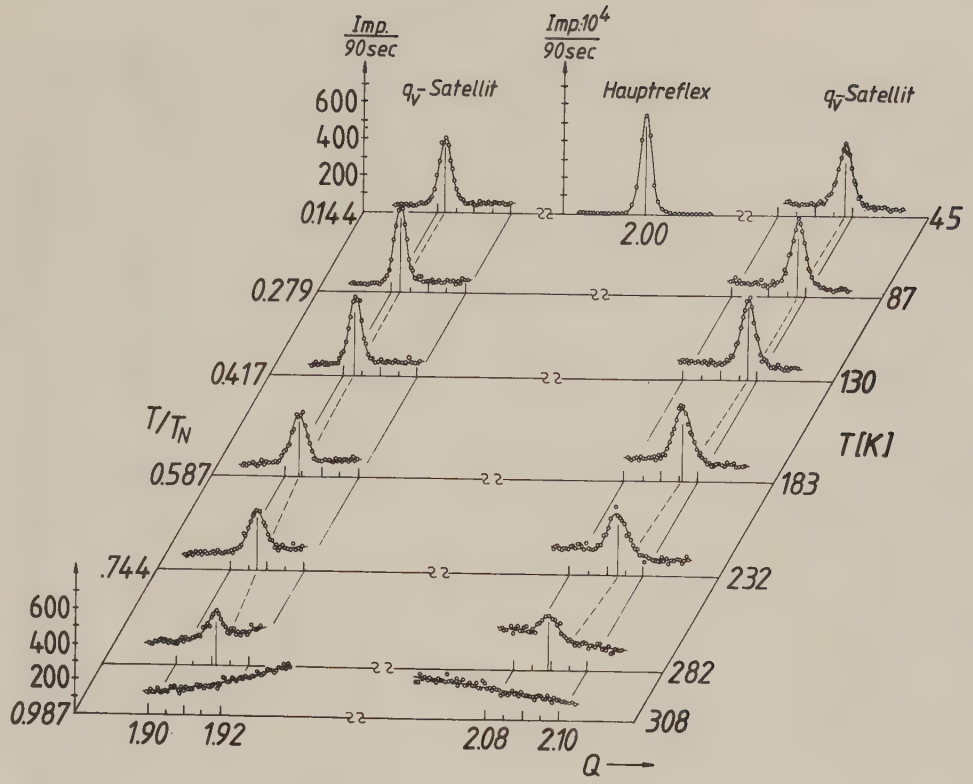


Abb.21: Temperaturabhängigkeit der den Hauptreflex (200) begleitenden Satelliten ($2\pm q_v$ 0 0)

5.4.1. Temperaturabhängigkeit der Gitterkonstanten

Die Auswertung der Peaklagen der durch θ-2θ-scans im Temperaturbereich $45 \leq T \leq 350$ K gemessenen Hauptreflexe ergibt den in Abb.22 dargestellten Verlauf der Gitterkonstanten. Da die Beugungswinkel mit dem fokussierenden Einkristalldiffraktometer nicht absolut gemessen werden können, wurden die Daten bei T = 297 K dem Literaturwert /40/ a=2,8841 Å angepaßt.

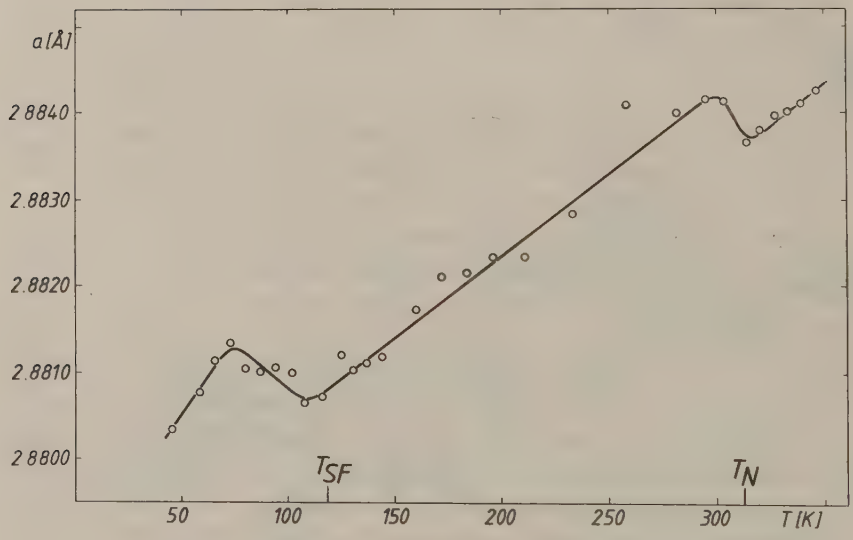


Abb.22: Temperaturabhängigkeit der Gitterkonstanten

Die Kurve weist zwei Bereiche einer anomalen Änderung der Gitterkonstanten auf. Einmal, wenn die magnetische Ordnung am Néel-Punkt bei T_N = 312 K einsetzt und zum anderen beim Wechsel in der magnetischen Ordnung von

der transversal polarisierten SDW in die longitudinal polarisierte SDW bei der Spin-Flip Temperatur T_{SF}=120 K. Beide Übergänge sind mit einer Volumenvergrößerung verbunden. Der große Wert der spontanen Magnetostriktion kann als Folge der starken Abhängigkeit der Austauschwechselwirkung vom atomaren Abstand angesehen werden, die sich auch in der Druckabhängigkeit der Übergangstemperaturen T_N und T_{SF} zeigt /41/. Beide Temperaturen sind nach der "itinerant electron theory" als Folge der Wechselwirkung zwischen der Elektron- und Lochfermifläche sehr empfindliche Parameter bezüglich der Reinheit der Probe. Demnach zeigt der gemessene Verlauf der Gitterkonstanten, daß der untersuchte Chromeinkristall keine Substanzen enthält, die die magnetische Struktur verändern.

Meßungen der thermischen Ausdehnung und der Magnetostriktion von Chromeinkristallen /42/ zeigten strukturelle Phasenübergänge 1. Art:

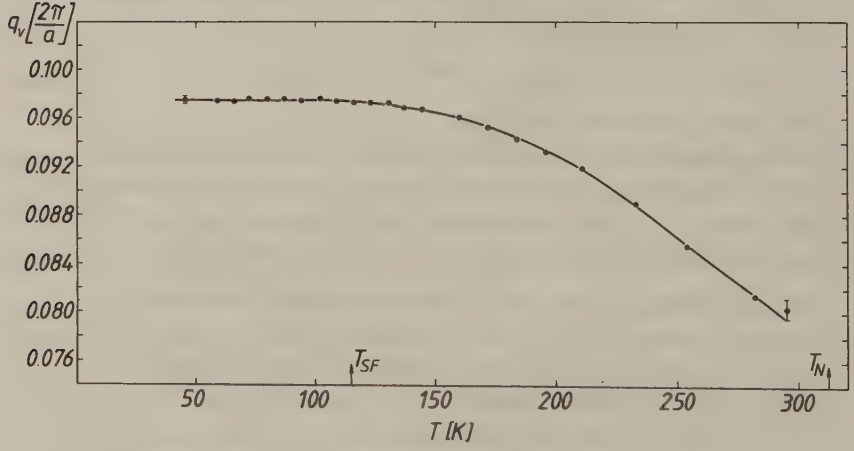
$$I\ m3m \xrightarrow{312\ K} I\ mmm \xrightarrow{120\ K} I\ \frac{4}{m}\ mm$$

für die gemittelte Struktur.
Röntgenbeugungsexperimente von /43/ zeigten im Rahmen ihrer Meßgenauigkeit keine Änderung der Gittersymmetrie. Sie gaben für die eventuelle Gitterverzerrung eine relative Gitterkonstantenänderung von $\Delta a/a \leq 10^{-5}$ an.

Für die Meßungen mit dem fokussierenden Einkristalldiffraktometer ergibt sich aus dem Fehler in der Peaklage bei der Anpassung der Gaußkurve an die Meßwerte ein relativer Fehler der Gitterkonstanten von $\Delta a/a \simeq 1 \cdot 10^{-5}$. Unter der Voraussetzung, daß der Einkristall beim Phasenübergang verzwillingt, kann aus der Halbwertsbreite des gemessenen Hauptreflexes als obere Grenze für die Änderung der Gitterkonstanten, die zu einer beobachtbaren Aufspaltung des Reflexes hätte führen müssen, der Wert $\Delta a/a \sim 5 \cdot 10^{-4}$ abgeschätzt werden.

5.4.2. Temperaturabhängigkeit des Wellenvektors

Der Wellenvektor der Modulationswelle wurde aus dem Abstand der Satelliten vom Hauptreflex bestimmt. Seine kontinuierliche Änderung mit der Temperatur ist in Abb.23 dargestellt. Während der Wellenvektor mit sinkender Temperatur zunächst stark ansteigt, ist seine Temperaturabhängigkeit unterhalb des Spin-Flip Übergangs nur noch gering.
Aus der Größe des Wellenvektors bei T = 45 K von $q_v[2\pi/a] = 0{,}0975$ ergibt sich die Periode der Modulationswelle zu $\lambda_v \cong 10{,}26$ a.



Ab.23: Temperaturabhängigkeit des Wellenvektors q_v der Modulationswelle

6. ABSOLUTEICHUNG DER PRIMÄRSTRAHLINTENSITÄT

Um den Vergleich zwischen den aus den Meßkurven bestimmten integralen Intensitäten der Haupt- und Satellitenreflexe und den für die verschiedenen Modelle der modulierten Struktur berechneten theoretischen Intensitäten zu ermöglichen (vgl. Abschnitt 7.2.2.), wurde die Primärstrahlintensität am Ort der Probe bestimmt.

Auf Grund der Nichtlinearität des Proportionalzählrohrs bei hohen Zählraten ($> 10^3$ Imp/sec) kann die Primärstrahlintensität experimentell nur indirekt bestimmt werden. Zur Abschätzung ihrer Größenordnung diente die Absorptionsfolienmethode.

6.1. Bestimmung der Primärstrahlintensität durch die Absorptionsfolienmethode

Der monochromatische Primärstrahl der Intensität I_o (Imp/sec cm^2) wird durch eine Reihe von Absorptionsfolien einheitlicher Dicke d geschwächt. Für die in der Zeit t registrierte Intensität gilt

$$I(n) = I_o \exp\{-n\,\mu d\} \quad , \qquad (6.1)$$

wobei μ der lineare Absorptionskoeffizient des Folienmaterials der Dicke d und n die Zahl der Folien ist. n ist durch die Zählstatistik nach oben und durch die Nichtlinearität des Zählrohrs nach unten begrenzt. Trägt man die Gerade $\log I = -n\,(\mu d) + \log I_o$ gegen die Folienzahl n auf, erhält man aus der Steigung den Wert von μd und durch Extrapolation auf $n=0$ die Primärstrahlintensität I_o .

Die experimentellen Bedingungen bei den Absorptionsmessungen entsprachen denen der Satellitenmessungen. Zur Schwächung des Primärstrahls wurden Ag-Folien der Dicke $d = 0{,}045$ mm verwendet. Bei Mittelung über mehrere Messungen wurde die Primärstrahlintensität durch lineare Regression zu

$$I_o = (1{,}40 \pm 0{,}16)\ 10^9\ \text{Imp/sec cm}^2$$

bestimmt. Der aus der Geradensteigung ermittelte Massenschwächungskoeffizient von Ag für MoK_α -Strahlung ergab sich zu $\mu/\rho = 29{,}3\ cm^2/g$ in guter Übereinstimmung zum Literaturwert von $\mu/\rho = 28{,}6\ cm^2/g$ /44/.
Die Unsicherheit dieser Methode liegt in der uneinheitlichen Dicke der verschiedenen Folien und deren unterschiedlichen Dichten sowie der Bestimmung des Primärstrahlquerschnitts.

Um die Primärstrahlintensität direkt aus der an der Chromprobe gestreuten Intensität zu bestimmen, wurde die Compton-Intensität mit einem Ge-Detektor gemessen.

6.2. Bestimmung der Primärstrahlintensität aus dem Comptonstreuquerschnitt

Bei der inelastischen Streuung von Photonen an einer Matrix findet eine Wellenlängenänderung zwischen einfallender und gestreuter Strahlung von $\Delta\lambda_c = \frac{h}{mc}(1-\cos 2\theta)$ statt. Dieser Wellenlängenänderung entspricht eine Energieänderung $\Delta E_c = hc/\Delta\lambda_c$, die bei der verwendeten Mo-Strahlung bei einigen hundert eV liegt.
Energieänderungen dieser Größenordnung können noch mit Festkörperdetektoren, deren Energieauflösung in diesem Bereich liegt, aufgelöst werden, aber nicht mehr durch Szintillations- und Proportionalzählrohre, deren Auflösung bei einigen tausend eV liegt (vgl. Abb.26 und 27).

6.2.1. Versuchsaufbau zur Meßung der Comptonintensität

Zur Meßung der an der Cr-Einkristallprobe gestreuten Comptonintensität wird das Proportionalzählrohr durch einen Intrinsic Germanium-Detektor (Princeton Gamma Techn., 7mm dick, $80mm^2$ aktiver Fläche) ersetzt. Er konnte wegen seines hohen Gewichts nur ortsfest, d.h.

nicht auf dem beweglichen Detektorarm aufgebaut werden. Deshalb konnte nur noch mit ω-scans oder bei stehendem Kristall gemessen werden. Den Aufbau des Meßplatzes mit der elektronischen Nachweiskette und der Datenein- und -ausgabe zeigt das Blockschaltbild der Abb.24.

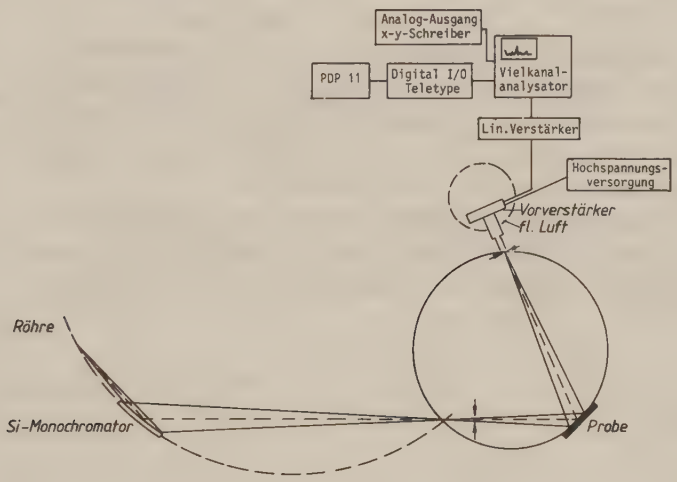


Abb.24: Meßanordnung zur Bestimmung der Compton-intensität

Die Ausgangssignale des Festkörperzählrohrs werden im Hauptverstärker weiter verstärkt und im Vielkanalanalysator gesammelt. Über einen Analogausgang konnten die Meßkurven direkt auf einen Schreiber gegeben werden oder über ein digitales Ein- und Ausgabesystem mit der Teletype protokolliert oder auf Lochstreifen ausgegeben werden. Mit der PDP 11 wurden die Meßdaten nach Peaklagen, Halbwertsbreiten und integralen Intensitäten ausgewertet.

6.2.2. Eichung der Energieskala und Bestimmung der Energieauflösung

Da die erwartete Energieänderung (vgl. Abb.28) im Bereich der Energieauflösung des Detektors liegt (vgl. Abb.26), ist eine sorgfältige Justierung der Nachweiskette sowie eine genaue Eichung des Vielkanalanalysators notwendig.

Zur Überprüfung der Justierung des Hauptverstärkers und zur Eichung der Energieskala des Vielkanalanalysators wurden verschiedene Standardfluoreszenzstrahlungen mit einer ^{241}Am-Quelle angeregt. Als Fluoreszenzmaterial diente Cu, Rb, Mo und Ag.
In dem mit Mo als Fluoreszenzmaterial aufgenommenen Spektrum der Abb.25 wurde die aus der Energieeichung gewonnene Energie-Kanal-Zuordnung mitberücksichtigt.

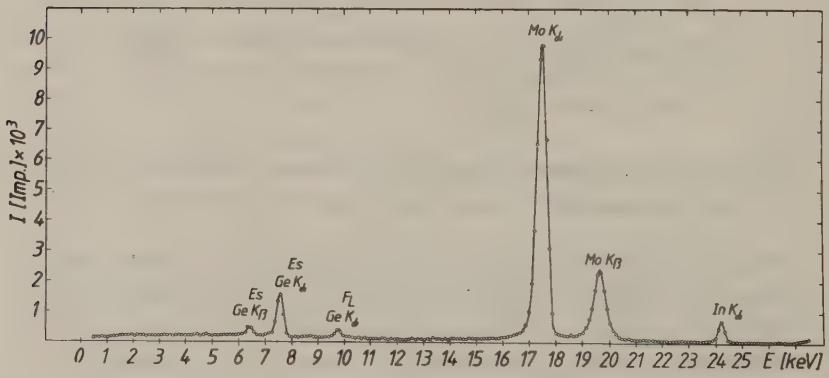


Abb.25: Mit dem Ge-Festkörperdetektor registriertes Spektrum der ^{241}Am-Quelle mit Mo als Fluoreszenzmaterial

Neben der MoK_α - und MoK_β-Linie zeigt das Spektrum eine Linie für die Ge-Fluoreszenzstrahlung des Detektormaterials sowie Escape-Peaks bei Energien, die der Energiedifferenz zwischen einfallender MoK_α -Strahlung und GeK_α - bzw. GeK_β -Röntgenfluoreszenzstrahlung entsprechen. Die InK_α -Linie stammt von der Röntgenfluoreszenzstrahlung von In, das den elektrischen Kontakt auf der Germaniumoberfläche bildet.

In Tabelle 2 sind die aus diesen Meßdaten gewonnenen Peaklagen zusammengefaßt und zum Vergleich den Literaturwerten /45/ gegenübergestellt.

Linie	experimentell bestimmte Energiewerte keV	Energiewerte aus der Literatur/45/ keV	ΔE keV
Escape $Ge_{K\alpha}$	7,597	7,573	0,024
Escape $Ge_{K\beta}$	6,457	6,462	0,005
Fluor. $Ge_{K\alpha}$	9,845	9,886	0,041
MoK_α	17,484	17,444	0,04
MoK_β	19,647	19,608	0,039
InK_α	24,194	24,210	0,016

Tab.2: Vergleich der mit dem Ge-Festkörperdetektor mit Mo als Fluoreszenzstrahlung im Experiment bestimmten Energien mit den Literaturwerten /45/

Die aus der Halbwertsbreite der Meßkurven errechnete Energieauflösung des Germaniumdetektors ist in dem für das Experiment wichtigen Energiebereich in Abb.26 wiedergegeben.

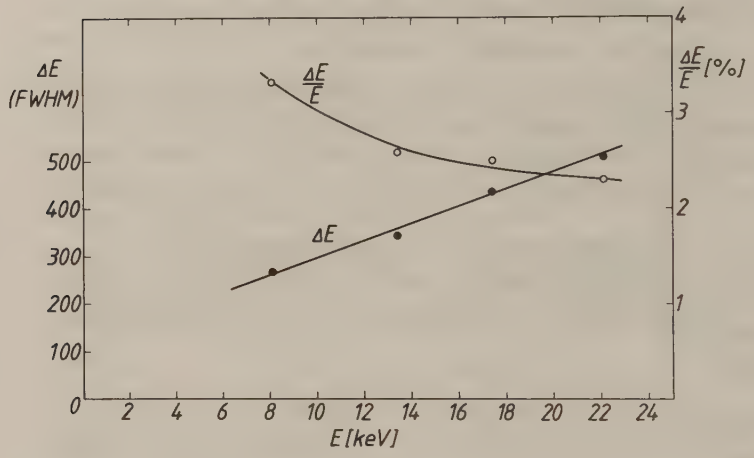


Abb.26: Energieauflösung des Ge-Festkörperdetektors

Bei der Energie der MoK_{α} -Strahlung beträgt die volle Breite beim halben Maximum (FWHM) 436,5 eV, was einer Energieauflösung des Ge-Detektors von 2,5% entspricht. Für das Verhältnis von gesamter Peakbreite bei einem Zehntel des Maximums (FWTM) zu dem bei der Hälfte des Maximums (FWHM) ergibt sich FWTM/FWHM = 1,88. Dieser Wert ist ein Maß für die geringe Asymmetrie der Peaks auf der niederenergetischen Seite /46/, die sich als Folge von ungleichmäßiger Ladungsansammlung in einigen Teilen des Detektors und durch Sekundäreletronen bzw. Bremsstrahlung des aktiven Volumens ergibt.
In einer Gegenüberstellung zeigt Abb.27 die mit dem Proportionalzählrohr und mit dem Ge-Festkörperzählrohr gemessene Impulshöhenverteilung der monochromatischen

K_α -Strahlung der Mo-Röntgenröhre. Daraus ist ersichtlich, daß auch mit dem Ge-Festkörperdetektor keine Trennung der K_{α_1}- und K_{α_2}-Strahlung, deren Energieabstand 105 eV beträgt, möglich ist.

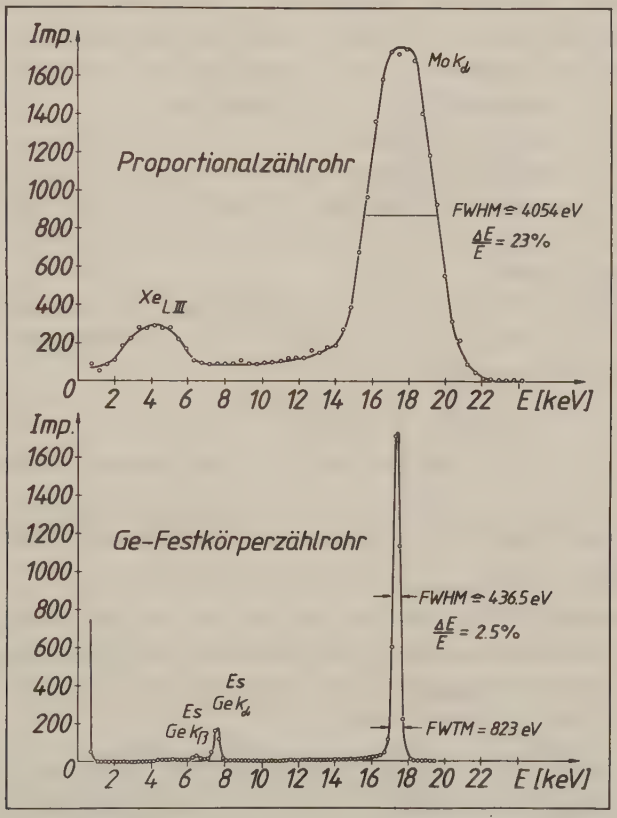


Abb.27: Mit dem Proportionalzählrohr und dem Ge-Festkörperdetektor registrierte Impulshöhenverteilung der K_α -Strahlung der Mo-Röhre

6.2.3. Meßung der Comptonintensität

Die Meßungen wurden bei feststehendem Kristall mit einer gegenüber den Satellitenmessungen unveränderten Strahlführung durchgeführt. Dabei war die Beobachtung der Comptonintensität in Bezug auf die Auswertung der Meßdaten begrenzt durch den Intensitätsunterschied zwischen der Compton- und der Braggintensität sowie durch die Energieauflösung des Detektors.
Deshalb wurde die Comptonintensität beim Beugungswinkel der Satellitenreflexe registriert. Um den Anteil der elastisch gestreuten Intensität zu vermindern, wurde der Kristall um den Winkel $\Delta\omega$ aus der Reflexionsstellung gedreht.
Die inelastische Streuung der Röntgenquanten der Wellenlänge λ_o ist mit einer vom Streuwinkel 2θ abhängigen Wellenlängenvergrößerung

$$\lambda_c = \lambda_o + \Delta\lambda_c = \lambda_o + \frac{h}{mc} \quad (1-\cos 2\theta) \tag{6.2}$$

verbunden /47/. Dieser entspricht eine Energieänderung

$$\Delta E = E_o - E_c = E_o \frac{\Delta\lambda_c}{\lambda_c} = E_o \frac{h/mc \ (1-\cos 2\theta)}{\lambda_o + h/mc \ (1-\cos 2\theta)} , \tag{6.3}$$

die für $\theta = 90^o$ ihren maximalen Wert erreicht.
Die Energieauflösung des Detektors bei der verwendeten Mo-Strahlung (vgl. Abb.26,27) begrenzt die Beobachtung der mit dieser Energieänderung verknüpften Comptonintensität auf Streuwinkel $2\theta \geq 50^o$.

Um den Anteil der inelastisch kohärenten Streuung thermisch angeregter Phononen an der inelastisch inkohärent gestreuten Comptonintensität zu verringern, wurden die Meßungen bei T = 50 K durchgeführt. Mit einer Meßzeit von 4000sec wurde die Comptonintensität bei den Beugungswinkeln der Satelliten $(4 \pm q_v \ 0 \ 0)$ und $(6 \pm q_v \ 0 \ 0)$ und einer um $\Delta\omega = \pm 5{,}0^o$ aus der Reflexionsstellung gedrehten Chromeinkristallprobe bestimmt.

Abb. 28 zeigt das beim Beugungswinkel des $(6+q_v\ 0\ 0)$ Satelliten gemessene Energieprofil der gestreuten Röntgenstrahlen.

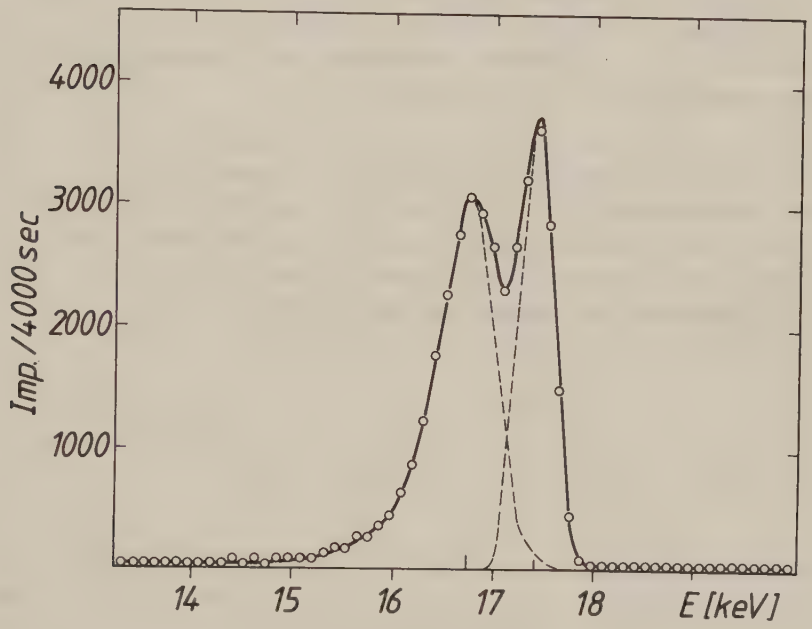


Abb.28: Energieverteilung der inelastisch und elastisch gestreuten Röntgenquanten

Die gestrichelten Kurven stellen den inelastischen bzw. elastischen Anteil an der Energieverteilung dar. Neben der die Comptonprofile charakterisierenden Asymmetrie auf der niederenergetischen Seite der Energieverteilung (vgl. Abschnitt 6.2.2.) zeigt die Abbildung die deutlich größere Halbwertsbreite der inelastischen gegenüber der elastischen Linie (vgl./59/).

Die Auswertung der Meßkurven erfolgte mit dem Programm W12 durch die Anpaßung asymmetrischer Gaußprofile an die Energieverteilungen. In Tab.3 sind die im Fit berechneten integralen Intensitäten der Comptonlinien zusammengefaßt. Zusätzlich sind in der Tabelle die aus den Peaklagen der elastischen und inelastischen Linien bestimmten Energieänderung ΔE_{obs} den nach der Beziehung (6.3) berechneten Energieänderungen ΔE_{calc} gegenübergestellt.

Um einen zusätzlichen Datensatz zur Berechnung der Primärstrahlintensität zur Verfügung zu haben, wurde die Comptonintensität im Minimum der thermisch diffusen Streuung am Rand der Brillouin-Zone beim Beugungswinkel der strukturell verbotenen Reflexe (500) und (700) gemessen. Die Ergebnisse der Auswertung dieser Daten sind in Tabelle 3 mit enthalten.

Satellit	2θ Grad	$\omega = \omega + \Delta\omega$ Grad	ΔE_{calc} eV	ΔE_{obs} eV	integrale Intensität I_{obs} 10^3Imp/4000sec
$4\text{-}q_v$ O O	57,42	23,71	271,7	296,1 ± 27,2	25,03 ± 3,40
		33,71	271,7	289,7 ± 23,6	19,51 ± 3,88
$4\text{+}q_v$ O O	60,59	25,30	299,1	284,4 ± 17,9	29,46 ± 3,81
		35,30	299,1	306,7 ± 24,8	22,21 ± 3,81
$6\text{-}q_v$ O O	93,22	41,61	609,5	634,7 ± 10,9	21,14 ± 1,73
		51,61	609,5	634,6 ± 22,8	18,40 ± 1,3
$6\text{+}q_v$ O O	97,30	43,65	648,9	640,2 ± 12,4	23,97 ± 0,99
		53,65	648,9	657,2 ± 15,8	19,79 ± 1,28
5 O O	75,99	37,99	441,7	456,2 ± 15,8	25,45 ± 2,43
7 O O	119,05	59,52	845,2	866,5 ± 15,3	25,36 ± 1,39

Tab.3: Fitergebnisse der Comptonintensitätsmessungen

6.2.4. Auswertung der Comptonintensitätsmeßungen

Die Primärstrahlintensität am Ort der Einkristallprobe wird aus dem Vergleich der gemessenen mit der berechneten Comptonintensität bestimmt.
Aus Gleichung (A1.26)bzw.(A1.27) erhält man

$$I^c_{calc} = I_o \; k \; V_1 \; (\omega) \; P_o R \; (Z-F)$$

mit der Konstanten

$$k = \frac{e^2}{mc^2} \frac{2}{v_{EZ}} \Delta\Omega^c = (52{,}3 \pm 5{,}3) \quad 10^{-8} \; cm^{-1}$$

Das in der Kristallstellung ω leuchtende Volumen V_1 (ω) und der Breit-Dirac-Korrekturfaktor R wurden aus den Gleichungen (E.7) und (A1.23) berechnet, der Wert von (Z-F) durch Interpolation aus den von Azàroff /48/ angegebenen Werten bestimmt.
Der Intensitätsvergleich $I^c_{obs} = I^c_{calc}$ ergibt dann für die Röntgenphotonenleistungsdichte am Probenort:

$$I_o = \frac{I^c_{obs}}{k \; V_1(\omega) \; P_o R \; (Z-F)} \quad \frac{Imp/sec}{cm^2} \qquad (6.4)$$

In Tab.4 sind die gemessenen Comptonintensitäten I^c_{obs} aus Tab.3 den berechneten Intensitäten I^c_{calc}/I_o gegenübergestellt. Die daraus bestimmten Primärstrahlintensitäten sind in der letzten Spalte aufgelistet.

Die Primärstrahlintensitäten, die aus dem Vergleich von gemessener und berechneter Comptonintensität der Satelliten $(4 \pm q_v \; 0 \; 0)$ bestimmt wurden, weichen in ihrem Mittel um 30% vom Mittel der übrigen Primärstrahlintensitäten ab. Dies beruht zum einen auf der Schwierigkeit, in der mit einer Energieauflösung des Detektors von 420 eV ermittelten Meßkurve die um 272 eV bzw. 300 eV (vgl. Tab.3) gegenüber der elastischen Linie verschobene Comptonlinie aufzulösen.

	I^c_{obs} 10^3 Imp/4000sec	I^c_{calc}/I_o 10^{-11} cm^2	I_o 10^9 Imp/sec cm^2
$4-q_v$ O O	25,03 ± 3,4	109,22	5,73 ± 0,78
	19,51 ± 3,88	90,56	5,37 ± 1,07
$4+q_v$ O O	29,46 ± 3,81	105,23	7,0 ± 0,9
	22,21 ± 3,81	84,66	6,56 ± 1,13
$6-q_v$ O O	21,14 ± 1,73	64,58	8,18 ± 0,71
	18,40 ± 1,30	55,52	8,29 ± 0,59
$6+q_v$ O O	23,97 ± 1,0	63,23	9,48 ± 0,4
	19,79 ± 1,28	54,62	9,06 ± 0,58
5 O O	25,45 ± 2,43	72,1	8,83 ± 0,84
7 O O	25,36 ± 1,39	60,45	10,48 ± 0,57

Tab.4: Bei verschiedenen Beugungswinkeln aus beobachteter und berechneter Comptonintensität ermittelte Primärstrahlintensität

Dies äußert sich in Tabelle 3 in dem Fehler mit dem die einzelnen integralen Intensitäten berechnet wurden. Während er bei diesen Beugungswinkeln im Mittel bei 16% liegt, konnten die bei den höheren Beugungswinkeln gemessenen Intensitäten mit einem mittleren Fehler von 7% angepaßt werden. Zum andern lag die Unsicherheit bei der Berechnung der Comptonintensität in der Abschätzung des leuchtenden Kristallvolumens. Durch den fast streifenden Einfall des Röntgenstrahls auf die Probe ($23^{\circ} \leq \omega \leq 35^{\circ}$) ist die leuchtende Kristallbreite nicht durch die Horizontaldivergenz des Primärstrahls sondern durch die Breite der Einkristallprobe bestimmt. Auf Grund ihrer trapezförmigen Fläche war die Bestimmung der Kristallbreite aus den nichtparallelen Trapezseiten für diese Kristallstellungen mit einem Fehler von $\sim 10\%$ behaftet.

Für die Berechnung der gemittelten Primärstrahlintensität wurde daher nur die bei den Beugungswinkeln der $(6 \pm q_v \; 0 \; 0)$ Satelliten und der verbotenen Reflexe ermittelte Intensität herangezogen. Mit den Werten der Tabelle 4 folgt dann

$$I_o = (9{,}05 \pm 1{,}44) \; 10^9 \; \text{Imp/sec cm}^2$$

Zum Vergleich mit der nach der Absorptionsfolienmethode (Abschnitt 6.1.) berechneten Primärstrahlintensität muß die unterschiedliche Nachweiswahrscheinlichkeit des Festkörperdetektors und des Proportionalzählrohrs für Mo-Strahlung berücksichtigt werden. Damit liegt die aus den Absorptionsmessungen bestimmte Primärstrahlintensität mit $I_o = (8{,}25 \pm 0{,}92) \; 10^9$ Imp/sec cm^2 innerhalb der Fehlergrenze der aus den Comptonintensitäten ermittelten Primärstrahlintensität.

6.3. Bestimmung der Primärstrahlintensität aus den Hauptreflexen

Zusätzlich zu den beiden bisher beschriebenen Methoden kann die Intensität des Primärstrahls am Ort der Einkristallprobe aus den im θ-2θ-scan gemessenen Hauptreflexen bestimmt werden.Dazu werden die bei der Anpassung der Meßkurven durch Gaußkurven gewonnenen integralen Intensitäten I_{obs} der Hauptreflexe mit den berechneten reflektierten Gesamtintensitäten I_{calc} der Reflexe verglichen.
Mit der im Anhang A1.1.1 abgeleiteten Beziehung (A1.15) für die reflektierte Gesamtintensität eines Reflexes

$$I_{calc}(\vec{H}) = \frac{I_o}{\omega} \; V_1(\omega) \; Q_H \; e^{-2M} \qquad \text{mit}$$

$$Q_H = \{\frac{e^2}{mc^2}\}^2 \; \frac{\lambda^3}{v_{EZ}^2} \; L_o P_o \; |F(\vec{H})|^2$$

folgt aus dem Vergleich mit der beobachteten Intensität I_{obs} :

$$I_o = \frac{I_{obs}}{1/\omega \; V_1(\omega) \; Q_H \; e^{-2M}} \qquad (6.5)$$

Um den störenden Anteil der thermisch diffusen Streustrahlung nicht berücksichtigen zu müssen,wurde die Rechnung für die bei T = 5o K beobachteten Hauptreflexe durchgeführt.Der Einfluß der Modulationswelle auf die Intensität der Hauptreflexe ist dabei,wie aus der sich anschließenden Diskussion der Modelle der Modulationswelle folgt (siehe Abschnitt 7.2),zu vernachlässigen.

In Tab. 5 sind die Intensitäten des Primärstrahls, die sich aus der Gegenüberstellung von berechneter und beobachteter Intensität der Reflexe (200), (400) und (600) ergeben, zusammengefaßt.

h 0 0	$\frac{I_{calc}(h00)}{I_o}$ 10^{-5} sec cm^2	I_{obs} 10^4 Imp	I_o $10^9 \frac{Imp}{sec\ cm^2}$
2 0 0	330,78 ± 33,08	335,26 ± 9,71	1,01 ± 0,13
4 0 0	36,97 ± 3,7	55,57 ± 2,6	1,5 ± 0,22
6 0 0	11,6 ± 1,16	20,12 ± 1,08	1,73 ± 0,27

Tab.5: Bestimmung der Primärstrahlintensität aus berechneter und beobachteter Intensität der Hauptreflexe

Dabei zeigt sich, daß die aus den Hauptreflexen (400) und (600) ermittelten Primärstrahlintensitäten innerhalb ihrer Fehler übereinstimmen, während die aus dem Hauptreflex (200) gewonnene Primärstrahlintensität einen um ∿ 35% durch Extinktion verringerten Wert ergibt.

Der Vergleich der mittleren linearen Ausdehnung $\bar{T}$ eines perfekt angenommenen Kristallits mit der Extinktionslänge /49/ $\Lambda=(\lambda/Q \sin\theta)^{1/2}$ zeigt, daß die Berechnung der Intensität der Hauptreflexe (400) und (600) durch die kinematische Streutheorie (vgl. Anhang A1.1.1) gerechtfertigt ist.

Dagegen muß für die Intensitätsberechnung des Hauptreflexes (200) die dynamische Theorie angewendet werden. Danach wird die von der Primärextinktion verursachte Intensitätsminderung durch einen modifizierten Reflexionskoeffizienten $Q'=Qf(A_o)$ mit $f(A_o)<1$ beschrieben /49/. (6.6)

Für den symmetrischen Braggfall folgt mit der aus der geätzten Chromeinkristalloberfläche abgeschätzten linearen Ausdehnung $\bar{T} \sim 10^{-4}$ cm aus

$$f(A_o) = \frac{\tanh A_o + |\cos 2\theta| \tanh |A_o \cos 2\theta|}{A_o (1 + \cos^2 2\theta)} \qquad (6.7)$$

und $$A_o = \frac{e^2}{mc^2} \frac{\lambda}{V_{EZ}} |F(\underline{H})| \frac{\bar{T}}{\sin\theta} \qquad (6.8)$$

der Reflexionskoeffizient zu Q'=0,8 Q, was einer Intensitätsminderung von ∼ 20% entspricht.

Die Sekundärextinktion wird durch einen effektiven Absorptionskoeffizienten berücksichtigt:

$$\mu_{eff} = \mu + q\, Q\, p \qquad (6.9)$$

mit $$q = \frac{1}{2\sqrt{\pi\eta}} \quad \text{und} \quad p = \frac{1+\cos^4 2\theta}{(1+\cos^2 2\theta)^2} \qquad (6.10)$$

Mit $\eta \sim 1'$ für die Standardabweichung der gegeneinander verkippten Mosaikblöcke folgt daraus für den Hauptreflex (200) eine Intensitätsschwächung durch Sekundärextinktion von ∼ 13%.

Die Abschätzung der Extinktion für den Hauptreflex (200) führt damit zu einer Intensitätsminderung von ∼ 33%. Dies entspricht ungefähr der Differenz von beobachteter und nach der kinematischen Theorie berechneter Intensität.

Als Ergebnis der drei Methoden zur Bestimmung der Primärstrahlintensität am Ort der Probe folgt:
Die aus den Hauptreflexen (400) und (600) ermittelte Primärstrahlintensität stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit der aus den Absorptionsfolienmessungen gewonnenen Primärstrahlintensität überein. Innerhalb der Meßfehler gelangt man zu demselben Intensitätswert für

die aus dem Comtponstreuquerschnitt berechnete und auf die Nachweiswahrscheinlichkeit des Proportionalzählrohrs für Mo-Strahlung skalierte Primärstrahlintensität.

Das Ergebnis der einzelnen Methoden ist:

Aus den Intensitäten der Hauptreflexe (4oo) und (6oo)	: $I_o = (1{,}62 \pm 0{,}24)\ 10^9$ Imp/sec cm^2
aus den Absorptionsfolienmessungen	: $I_o = (1{,}4 \pm 0{,}16)\ 10^9$ Imp/sec cm^2
aus den Comptonintensitäten	: $I_o = (1{,}54 \pm 0{,}24)\ 10^9$ Imp/sec cm^2

7. DISKUSSION DER GÜLTIGKEIT DER VERSCHIEDENEN MODELLE FÜR DIE MODULATION DURCH DEN VERGLEICH MIT DEN MESSERGEBNISSEN

Zur Beschreibung der modulierten Struktur von Chrom in der magnetisch geordneten Phase ($T \lesssim T_N = 312$ K) wird die im Röntgenbeugungsbild beobachtete Intensitätsverteilung mit den Theorien der Dichtemodulation der Elektronenhülle und der Verschiebung der Elektronenhülle diskutiert. Dabei werden die charakteristischen Merkmale der dargestellten Theorien dazu verwendet, die beobachteten Intensitäten qualitativ zu beschreiben um damit den Typ der Modulation zu bestimmen.

7.1. Modulation der Streukraftdichte (Ladungsdichtewelle)

Der im Anhang A2.1 beschriebene harmonische Ansatz für die Modulation des Streuvermögens:

$$f = f_o \, (1 + A_D \cos (\vec{q}_D \cdot (\vec{r}_{uvw} + \vec{r}_j) + \delta))$$

führt zu folgender Intensitätsverteilung des Beugungsbildes (vgl. (A2.4) und (A2.5)):
Für die Intensität der Hauptreflexe erhält man an den Stellen $\vec{H}$:

$$I(\vec{H}) \sim N^2 \, f_o^{\,2} \, (2 + 2 \operatorname{sgn} \tau) \, ,$$

während die Intensität der Satelliten an den Stellen $\vec{H} \pm \vec{q}_D/2\pi$ gegeben ist durch:

$$I\left(\vec{H} \mp \frac{\vec{q}_D}{2\pi}\right) \sim N^2 \, f_o^{\,2} \, \frac{A_D}{4}^{\,2} \, \left(2 + 2 \operatorname{sgn}\tau \cos \left(\frac{q_D}{2} + \delta' \right)\right)$$

Dieses Modell führt zu folgenden charakteristischen Merkmalen:

a) Die Auslöschungsregel der unmodulierten Struktur bleibt für die Hauptreflexe bei der Modulation des Streuver-

mögens bei beliebigen Phasenverschiebungen erhalten.

b) Als Folge des einfach harmonischen Ansatzes für die Modulationsfunktion wird jeder Hauptreflex nur von einem einzigen Paar Satelliten begleitet.

c) Erfolgt die Modulation in Richtung $\underset{\sim}{a}_{\tau}$, werden auch nur Satelliten in Richtung $\underset{\sim}{a}_{\tau}^{*}$ erwartet.

d) Die Intensität der Hauptreflexe und Satelliten ist unabhängig von der Phasenverschiebung δ der Dichtewelle gegenüber dem unmodulierten Gitter. Die Phase der Modulationswelle ist in Bezug auf das Grundgitter durch keine energetische Bedingung festgelegt. Somit ist das Kriterium für eine "Goldstone Mode" erfüllt: Die Phasenverschiebung der Dichtewelle gegenüber dem Grundgitter hat keine Energieänderung der Zustände zur Folge.

e) Die Abhängigkeit der Intensität der Satelliten, die zu erlaubten bzw. verbotenen Hauptreflexen gehören, von der Phasenverschiebung δ' der Dichtewelle zwischen Mitten- und Eckatom ist in Tab.6 zusammengefaßt.
Daraus folgt, daß auch verbotene Hauptreflexe ($\mathrm{sgn}\tau = -1$) von einem Satellitenpaar begleitet werden.
Die Intensität der Satelliten eines Paares ist, von geometrischen Faktoren und von Änderungen des Formfaktors mit $Q=4\pi \sin\theta/\lambda$ abgesehen, gleich.

f) Die Intensität der Satelliten zeigt k e i n e Indexabhängigkeit und ist nur durch die Amplitude A_D der Dichtewelle und die Phase δ' bestimmt.

für	$I(\vec{H} \mp \frac{q_D}{2\pi}) \sim$	δ' beliebig	$\delta'=0$ (gleichphasig)	$\delta'=\pi/2$	$\delta'=\pi$ (gegenphasig)
h+k+l= g ≙	$\frac{A_D^2}{4}$ ·	$\{2+2\cos(\frac{q_D}{2}+\delta')\}$	$\{2+2\cos\frac{q_D}{2}\}$	$\{2-2\sin\frac{q_D}{2}\}$	$\{2-2\cos\frac{q_D}{2}\}$
$sgn\tau=+1$			[∼3.9]	[∼1.4]	[∼0.1]
h+k+l=ug ≙	$\frac{A_D^2}{4}$ ·	$\{2-2\cos(\frac{q_D}{2}+\delta')\}$	$\{2-2\cos\frac{q_D}{2}\}$	$\{2+2\sin\frac{q_D}{2}\}$	$\{2+2\cos\frac{q_D}{2}\}$
$sgn\tau=-1$			[∼0.1]	[∼2.6]	[∼3.9]

Tab.6: Intensität der Satelliten erlaubter bzw. verbotener Hauptreflexe für spezielle Werte der Phase δ' im Modell der harmonischen Ladungsdichtewelle

Nachdem in den Röntgenbeugungsexperimenten keine Intensität bei Hauptreflexen (hkl) mit h+k+l=ungerade beobachtet wurde, wird die Auslöschungsregel für die Hauptreflexe in der dichtemodulierten Struktur durch das Experiment bestätigt.
In Übereinstimmung mit dem Modell wurden bei den Hauptreflexen in Richtung der Hauptachsen jeweils nur ein Paar Röntgensatelliten beobachtet.
Die Auswertung der Intensitätsbeziehungen der Tab.6 mit dem Wellenvektor q[2π/a]=0,0975 der Modulationswelle (vgl. Abb.23) ergibt bei spezieller Wahl der Phase δ' die in eckigen Klammern zusätzlich angegebenen Intensitäten der Satelliten. Da im Experiment nur Satelliten bei erlaubten Hauptreflexen beobachtet wurden, führt das Modell der Ladungsdichtewelle nur bei gleichphasiger Dichtewelle am Mitten- und am Eckatom zu einer Übereinstimmung mit der Meßung.
Aus dem Modell der Ladungsdichtewelle folgt, daß die Intensität der Satelliten ohne Einschränkung der Phase unabhängig vom Index ist (vgl. (A2.5)). Daher müßten die Satelliten des Reflexes (130) bzw. des Reflexes (310), von geometrischen Faktoren und der Änderung des Formfaktors abgesehen, mit gleicher Intensität beobachtet werden.
Dem widersprechen jedoch die in Abb.15 dargestellten Meßungen der Satelliten $(1\ 3\pm q_v\ 0)$ und $(1\pm q_v\ 3\ 0)$. Aus Tab.1 ergibt sich für die Meßungen im 2θ-scan ein Intensitätsverhältnis der Satelliten von $I(1\ 3\pm q_v\ 0)/I(1\pm q_v\ 3\ 0) \approx 11{,}8$ bzw. von $I(3\pm q_v\ 1\ 0)/I(3\ 1\pm q_v\ 0) \approx 9{,}5$
(für die richtige Erklärung dieser Intensitätsverhältnisse siehe Seite 74).

Daß diese Diskrepanz zum Modell nicht auf Domäneneffekte als Folge einer unterschiedlichen Ausbildung der Ladungsdichtewelle in Richtung der Hauptachsen zurückzuführen ist, zeigen qualitativ die Meßungen der Satelliten $(2\ 2\pm q_v\ 0)$ und $(2\pm q_v\ 2\ 0)$.

Unter Berücksichtigung der Fokalabstände, der geometrischen Faktoren und des Formfaktors wurden sie mit fast gleicher Intensität beobachtet (vgl. Abb.15 und Tab.1).

Als Folge der Indexunabhängigkeit (vgl. (A2.5)) ist die Intensität der die verschiedenen Hauptreflexe begleitenden Satelliten alleine durch den Strukturfaktor bestimmt. Die Satellitenintensitäten müßten demnach die $\sin\theta/\lambda$-Abhängigkeit der Hauptreflexe aufweisen, d.h. die Wurzel aus den durch die winkelabhängigen Anteile und durch den Strukturfaktor normierten Intensitäten der Haupt- und Satellitenreflexe müßte, gegen $\sin\theta/\lambda$ aufgetragen,zwei Geraden gleicher Steigung ergeben.

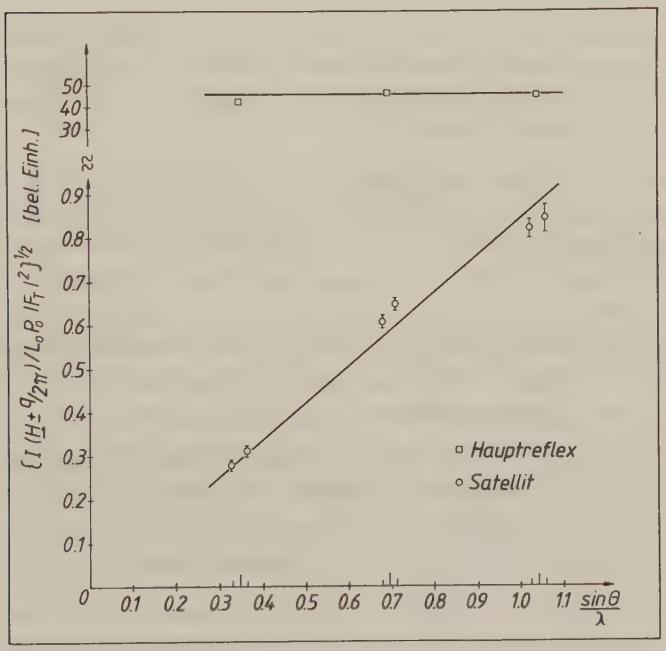


Abb 29: Indexabhängigkeit der Wurzel aus den normierten integralen Intensitäten der Haupt- und Satellitenreflexe

In Abb. 29 ist die Wurzel aus den normierten, integralen Intensitäten der im θ-2θ-scan mit Mo-Strahlung bei T=47 K gemessenen Hauptreflexe (200), (400) und (600) und der Satelliten ($2\pm q_v$ 0 0), ($4\pm q_v$ 0 0) und ($6\pm q_v$ 0 0) in Abhängigkeit von $\sin\theta/\lambda$ dargestellt. Der Vergleich bestätigt den Widerspruch der Meßergebnisse zum Modell der Ladungsdichtewelle:
Die Intensität des Hauptreflexes (200) ist durch Extinktion um ∿33% vermindert (vgl. Abschnitt 6.3.), so daß die eingezeichnete Steigung der Gerade durch die Hauptreflexe gerechtfertigt ist. Eine ganz andere Steigung zeigt dagegen die Gerade durch die Satelliten, d.h. ihre Intensität wird durch einen zusätzlichen Faktor bestimmt, der indexabhängig ist.

Die im Experiment im magnetisch geordneten Zustand von Chrom beobachteten Intensitäten der Satelliten können damit n i c h t durch das Modell einer harmonischen Ladungsdichtewelle beschrieben werden.

Für den Fall einer phasenmodulierten Ladungsdichtewelle ist die im Anhang A2.1.1 beschriebene Intensität der "Ladungsdichtewellen"-Satelliten (vgl. (A2.15)) im wesentlichen durch die Amplitude A_D der Ladungsdichtewelle bestimmt. Der zusätzliche Beitrag der O.Besselfunktion ist als Folge der zu erwartenden kleinen Amplitude $\hat{\delta}$ der Phasenmodulation durch $J_o[\delta] \sim 1$ gegeben. Daher ist auch dieses Modell mit dem Argument der Indexunabhängigkeit auszuschließen.

Daß die zusätzlich erwarteten "Phasen"-Satelliten (vgl. Abb. A2) nicht beobachtet wurden, kann auf Grund des kleinen Wertes von $A_D^2 J_n^2[\hat{\delta}]$ $(n \geq 1)$ (vgl. (A2.16 und C.2)) nicht zum Ausschluß des Modells herangezogen werden.

7.2. Modulation der Ortsparameter (harmonische Verzerrungswelle)

Die harmonische Modulation der Ortsparameter

$$\underset{\rightarrow}{r}'_{uvw} = \underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{A}_v \sin\,(\underset{\rightarrow}{q}_v \cdot (\underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{r}_j) + \rho)$$

führt zu folgender Intensitätsverteilung im Beugungsbild (vgl. Anhang A2.2):
Die Intensität der Hauptreflexe (vgl. (A2.24)) an den Stellen $\underset{\rightarrow}{H}$ ist gegeben durch:

$$I\,(\underset{\rightarrow}{H}) \sim N^2\, f_o^{\,2}\, J_o^2\, [2\pi \underset{\rightarrow}{H} \cdot \underset{\rightarrow}{A}_v]\,\{2+2\mathrm{sgn}\tau\}\ .$$

Satelliten findet man an den Stellen $\underset{\rightarrow}{H} \pm n\,\underset{\rightarrow}{q}_v/2\pi$ mit der Intensität (vgl. (A2.25)):

$$I\,(\underset{\rightarrow}{H} \mp n\frac{\underset{\rightarrow}{q}_v}{2}) \sim N^2\, f_o^{\,2}\, J_n^{\,2}\, [2\pi(\underset{\rightarrow}{H} \mp n\frac{\underset{\rightarrow}{q}_v}{2\pi}) \cdot \underset{\rightarrow}{A}_v]\,\left\{2+2\mathrm{sgn}\tau\cos\, n(\frac{q_v}{2}+\rho')\right\}$$

mit $\mathrm{sgn}\tau = +1$ für h+k+l = gerade

und $\mathrm{sgn}\tau = -1$ für h+k+l = ungerade.

$J_n\,[z]$ ist die Besselfunktion 1. Art der Ordnung n (vgl. (C.1)).

Die charakteristischen Merkmale des Beugungsbildes sind folgende:

a) Die Innenzentrierung des Gitters und damit die Auslöschungsregeln bleiben bei der Modulation der Struktur durch die Verzerrungswelle erhalten.

b) Ein Hauptreflex wird von unendlich vielen Paaren von Satelliten begleitet.

c) Die Intensitäten der Hauptreflexe und der Satelliten sind i n d e x a b h ä n g i g und werden durch die Besselfunktionen $J_n[z]$ bestimmt, deren Argumente z aus dem Skalarprodukt des Streuvektors $\underset{\rightarrow}{Q}=2\pi(\underset{\rightarrow}{H} \pm n\,\underset{\rightarrow}{q}_v/2\pi)$ und der Amplitude der Verzerrungswelle $\underset{\rightarrow}{A}_v$ gebildet werden.

f) Auf Grund ihrer besonderen Eigenschaft als "Goldstone"-Variable führt die Phasenverschiebung ρ der Verzerrungswelle gegenüber dem Grundgitter zu keiner Energieänderung der Zustände und übt daher keinen Einfluß auf die Intensität der Hauptreflexe und Satelliten aus.

g) Die Abhängigkeit der Satellitenintensität von der Phasenverschiebung ρ' der Verzerrungswelle am Innenatom gegenüber dem Eckatom gibt Tab.7 wieder. Für $q[2\pi/a]=0{,}0975$ ist der Wert der geschweiften Klammer für die speziellen Phasen ρ' am Beispiel des Satelliten 1. Ordnung (n=1) in eckigen Klammern in Tab.7 mit aufgeführt.

h) Erfolgt die Modulation der Ortsparameter in Richtung $\underset{\sim}{a}$, werden die Satelliten in Richtung $\underset{\sim}{a}^*$ beobachtet, d.h. die Gitterstäbe, auf denen die Satelliten liegen, geben die Richtung der Überperiode an.

i) Wird die Polarisation der Verzerrungswelle mit berücksichtigt, ergeben sich folgende zusätzliche Merkmale:
Bei einer transversalen Modulation in Richtung $\underset{\sim}{a}$ mit einer Amplitude A_{2v} parallel $\underset{\sim}{b}$ (vgl. Anhang A2.2.1.) hängt die Intensität der Hauptreflexe und Satelliten nur von k ab, d.h. die Richtung der Indexabhängigkeit (im Beispiel des Anhangs A2.2.1 ist dies $\underset{\sim}{b}^*$) stimmt nicht mit der Richtung der Satellitenordnung (im Beispiel $\underset{\sim}{a}^*$) überein. Da für ein konstantes k die Intensitäten der Satelliten gleich sind, werden sie in Abb.30 durch gleich große Satellitenkreise beschrieben. Die relativen Satellitenintensitäten nehmen senkrecht zur Modulationsrichtung, also mit steigendem k, zu.
In der Ebene (hOl) beobachtet man nur Hauptreflexe, während die Satelliten ausgelöscht sind.

für	$I(\vec{H} \mp n\frac{q_v}{2\pi}) \sim$	ρ'	$\rho'=o$ (gleichphasig)	$\rho'=\pi/2$	$\rho'=\pi$ (gegenphasig)
$h+k+l=g \triangleq$	$J_n^2[2\pi(\vec{H} \mp n\frac{q_v}{2\pi})\cdot\vec{A}_v]\cdot$	$\{2+2\cos n(\frac{q_v}{2}+\rho')\}$	$\{2+2\cos n\frac{q_v}{2}\}$	$\{2-2\sin n\frac{q_v}{2}\}$	$\{2-2\cos n\frac{q_v}{2}\}$
$sgn\tau=+1$			[~3.9]	[~1.4]	[~0.1]
$h+k+l=ug \triangleq$	$J_n^2[2\pi(\vec{H} \mp n\frac{q_v}{2\pi})\cdot\vec{A}_v]\cdot$	$\{2-2\cos n(\frac{q_v}{2}+\rho')\}$	$\{2-2\cos n\frac{q_v}{2}\}$	$\{2+2\sin n\frac{q_v}{2}\}$	$\{2+2\cos n\frac{q_v}{2}\}$
$sgn\tau=-1$			[~0.1]	[~2.6]	[~3.9]

Tab.7: Intensität der Satelliten erlaubter bzw. verbotener Hauptreflexe für spezielle Phasen ρ' im Modell der harmonischen Modulation der Ortsparameter

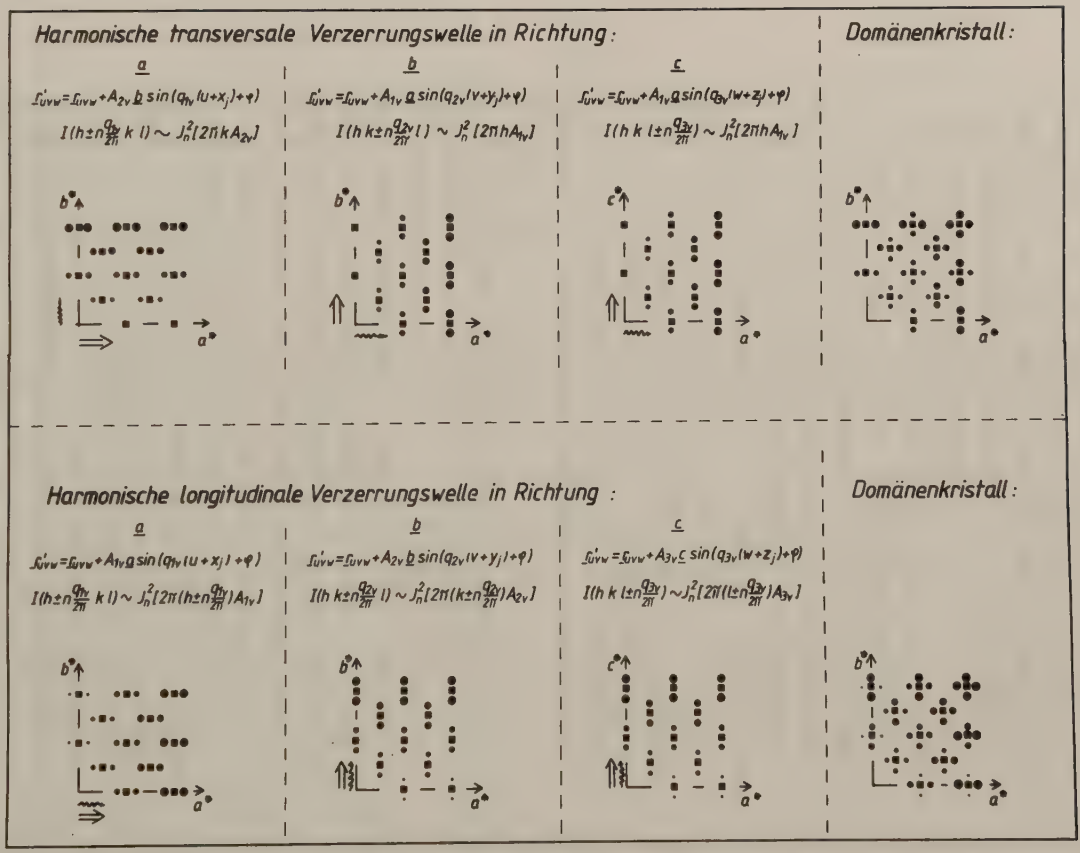


Abb.30: Intensität der Satelliten 1.Ordnung im Beispiel zweier Modelle. (■ = Hauptreflexe, ● ● ● ●● = Satelliten, ∿∿∿► = Richtung der Indexabhängigkeit der Satellitenintensität, ⟹ = Richtung, in der die Satelliten auftreten)

Die Intensität der Satellitenpaare ist symmetrisch zu beiden Seiten eines Hauptreflexes gleich.

Bei einer longitudinalen Modulation stimmt die Richtung der Indexabhängigkeit der Satellitenintensität (im Beispiel des Anhangs A2.2.2 ist dies $\underset{\sim}{a}$) mit der Richtung der Satellitenordnung ($\underset{\sim}{a}^*$) überein.

Aus Abb.30 ist zu entnehmen, daß die relativen Satellitenintensitäten in Richtung der Modulation mit wachsendem Index ansteigen, während sie auf Geraden senkrecht zur Modulationsrichtung konstant sind. Daß die einen Hauptreflex begleitenden Satelliten eines Paares unterschiedliche Intensität haben, wurde in den Satellitenkreisen der Abb.30 nicht mitberücksichtigt.

In Kristallen mit kubischer Symmetrie sind die in Abb.30 dargestellten Anordnungen der Satelliten und ihre Intensitäten für Modulationen in Richtung $\underset{\sim}{a}$, $\underset{\sim}{b}$ und $\underset{\sim}{c}$ untereinander und mit ihren Gegenrichtungen gleichwertig. Für einen Chromeinkristall im "multi-q" Zustand entsteht daher die in der rechten Spalte dargestellte Anordnung der Satelliten um die Hauptreflexe durch Überlagerung von 6 Satellitengruppen (vgl. Anh.B).

Der Vergleich mit den Röntgenbeugungsexperimenten ergibt Übereinstimmung für die aus dem Modell der harmonischen Verzerrungswelle resultierende Auslöschungsregel für die Hauptreflexe.
Nach diesem Modell werden die beobachtbaren Intensitäten neben den üblichen Faktoren durch das Quadrat der Besselfunktionen 1. Art der Ordnung n=0 für die Hauptreflexe und der Ordnung $n \geq 1$ für die Satelliten beschrieben.

In einer Übersicht zeigt Abb.31 den Verlauf der Besselfunktionen O., 1. und 2. Ordnung für das Argument $0 \leq z \leq 15$ und in einer Ausschnittsvergrößerung für $0 \leq z \leq 2{,}0$.

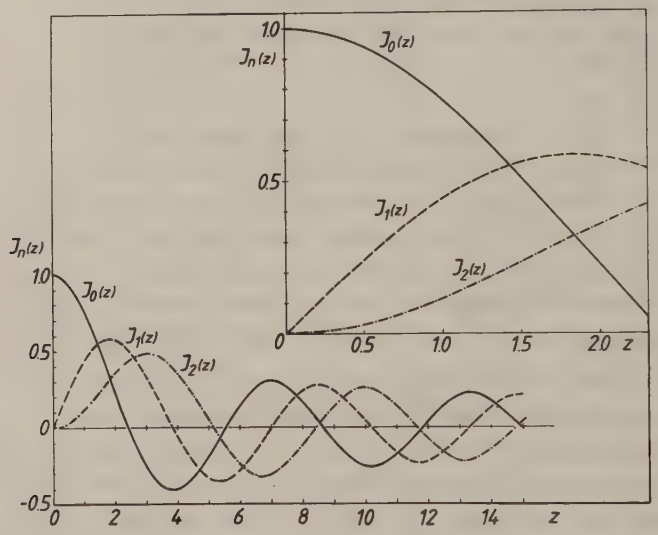


Abb.31: Besselfunktion 1. Art der Ordnungen O,1 und 2 als Übersicht und vergrößert für die Argumente $0 \leq z \leq 2$

Für die Argumente $0 \leq z \leq 0{,}1$ sind die Besselfunktionen O., 1. und 2. Ordnung in Abb.32 dargestellt. Ihre numerische Abschätzung für kleine Argumente z wird im Anhang C beschrieben.

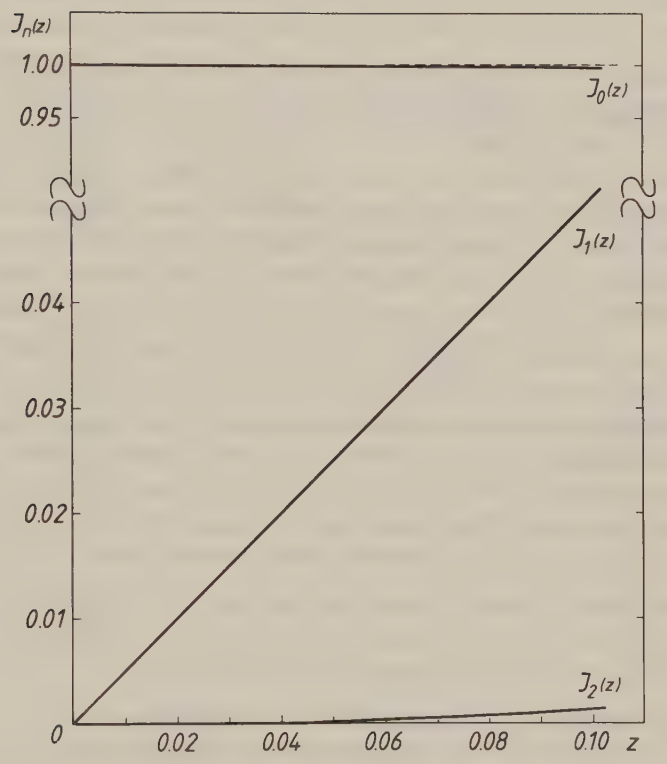


Abb.32: Besselfunktion O., 1. und 2. Ordnung
für kleine Argumente: $0 \leq z \leq 0{,}1$

Der Vergleich mit Abb.29 zeigt die qualitativ gute Übereinstimmung der gemessenen Intensitäten der Hauptreflexe und der sie begleitenden Satelliten mit den Theoriefunktionen der Abb.32. Insbesondere wird die Indexabhängigkeit der Satellitenintensität durch den Verlauf der Besselfunktion 1. Ordnung richtig wiedergegeben.

Der Verlauf der Besselfunktion 2. Ordnung zeigt, daß die Satelliten 2. Ordnung (siehe Abschnitt 5.2) nicht beobachtet werden konnten (vgl. hierzu Abschnitt 7.2.4.).

Die Diskussion der in Tab.7 für spezielle Phasenverschiebungen φ' interpretierten Intensitäten der Satelliten 1. Ordnung von erlaubten und verbotenen Hauptreflexen erfolgt durch den Vergleich mit den in Abschnitt 5.1 und 5.3 beschriebenen Experimenten. Danach werden die gemessenen Intensitäten im Fall einer gleichphasigen Auslenkung ($\varphi'=0$) des Mitten- und Eckatoms richtig beschrieben.

Zwischen transversaler und longitudinaler Störung kann nach Abb.30 unterschieden werden:

1.) durch das Auftreten von Satelliten in Richtung der Modulation bei Hauptreflexen vom Typ (hOO), (OkO) und (OOl)
2.) durch die Art, wie sich die relative Satellitenintensität in Richtung der Modulation ändert.

Im Experiment wurden Satelliten in Richtung $\pm\underset{\rightarrow}{a}^*$ bei Hauptreflexen vom Typ (hOO) beobachtet, deren Intensität mit $I \sim J_1^2[z]$ ansteigt (vgl. Abb.29).

Damit lassen sich die gemessenen Intensitäten der Hauptreflexe und der Satelliten durch das Modell einer h a r m o n i s c h e n l o n g i t u d i n a l e n V e r z e r r u n g s w e l l e beschreiben.

Das auf Seite 64 diskutierte Verhältnis der Satellitenintensitäten $I\ (1\ 3\pm q_v\ 0) / I\ (1\pm q_v\ 3\ 0) \sim 11{,}8$ und $I\ (3\pm q_v\ 1\ 0) / I\ (3\ 1\pm q_v\ 0) \sim 9{,}5$ wird anschaulich in Abb. 30 b durch das Modell der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle richtig wiedergegeben.

Mit der Näherung für die Besselfunktion 1. Ordnung (vgl. (C.4)) $J_1[z] \sim 1/2\ z$ und der Näherung für die Argumente mit $z_1 \sim h \pm q_{1v}/2\pi \simeq 1$ und $z_2 \sim k \pm q_{2v}/2\pi \simeq 3$ ergibt sich für die den Hauptreflex (130) begleitenden Satelliten ein theoretisches Intensitätsverhältnis von $I\ (1\ 3 \pm q_v\ \ 0\ ) \ /\ I\ (1 \pm q_v\ 3\ 0) \simeq J_1^2\ [z_2] \ /\ J_1^2\ [z_1] \simeq 9$.

Ein entsprechendes theoretisches Intensitätsverhältnis folgt für die den Hauptreflex (310) begleitenden Satelliten. Dieser Wert stimmt im Rahmen der eingeführten Näherungen in der Größenordnung mit dem Verhältnis der gemessenen Satellitenintensitäten (11,8 bzw. 9,5) überein.

Damit werden auch die beobachteten Intensitäten der die Reflexe (130) und (310) begleitenden Satelliten (vgl. Abb. 15 und Tab. 1 in Abschnitt 5.1) durch das Modell der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle richtig beschrieben.

7.2.1. Bestimmung der Amplitude der Verzerrungswelle aus den durch die Hauptreflexintensitäten skalierten Satellitenintensitäten

Nach qualitativer Übereinstimmung des Modells einer harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle mit den Merkmalen des beobachteten Beugungsbildes wird im folgenden überprüft, ob die beobachteten Satellitenintensitäten auch quantitativ durch die Theorie beschrieben werden können.
Dazu wird die Amplitude der Verzerrungswelle aus den skalierten Satellitenintensitäten bestimmt. Da sich die Beugungswinkel und Kristallstellungen der Hauptreflexe und der sie begleitenden Satelliten in der Reflexionsstellung nur wenig unterscheiden, kann das Verhältnis der winkelabhängigen Anteile der Intensitätsbeziehungen (Lorentz-, Polarisations- und Atomformfaktor) $\simeq 1$ gesetzt werden.
Dann gilt für das berechnete Intensitätsverhältnis

$$\frac{I_{calc}(h\pm\frac{q_{1v}}{2\pi}\ 00)}{I_{calc}(h00)} = \frac{J_1^2\,[2\pi(h\pm\frac{q_{1v}}{2\pi})\,A_{1v}]\,\{2+2\cos\frac{q_{1v}}{2}\}}{J_o^2\,[2\pi hA_{1v}]\quad 4} \qquad (7.1)$$

Aus dem Vergleich mit den gemessenen integralen Intensitäten folgt mit $J_o^2[2\pi hA_{1v}]\simeq 1$

$$J_1[2\pi(h\pm q_{1v}/2\pi)A_{1v}] = \left(\frac{I_{obs}(h\pm\frac{q_{1v}}{2\pi}\ 00)\ \ 4}{I_{obs}(h00)\{2+2\cos\frac{q_{1v}}{2}\}}\right)^{1/2} \qquad (7.2)$$

Für diesen Wert der Besselfunktion liefert die mit dem Fortranprogramm BESSEL (vgl. C) erstellte Tabelle das dazugehörende Argument z, wodurch die Amplitude mit $A_{1v}=z/2\pi(h\pm q_{1v}/2\pi)$ gegeben ist. (7.3)
Bei der Temperatur T = 54 K wurde die Amplitude der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle zu

$$A_{1v} = (17{,}87 \pm 1{,}12)\ 10^{-4}\ a$$

bestimmt (a=Gitterkonstante).
Da sich der kubische Einkristall während der Meßungen in einem "multi-$\vec{q}$" Zustand befand, wurde die Amplitude unter der Annahme einer isotropen Verteilung der Domänen auf das leuchtende Kristallvolumen (vgl. Anhang B) berechnet.

In Abb. 33 ist die Wurzel aus den integralen Intensitäten der Satelliten $(2\pm q_v\ 0\ 0)$, $(4\pm q_v\ 0\ 0)$ und $(6\pm q_v\ 0\ 0)$,

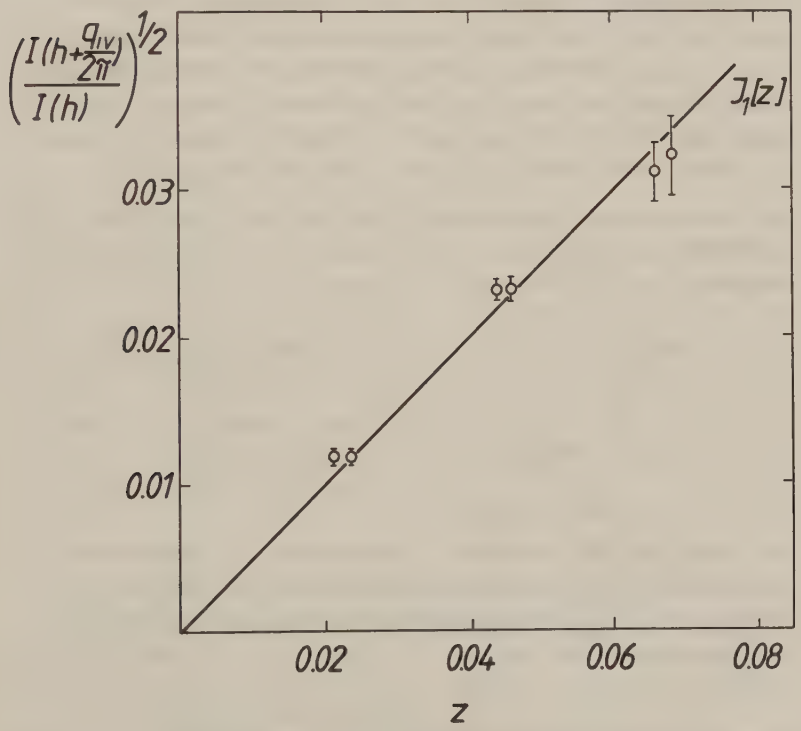


Abb. 33: Durch die Hauptreflexintensitäten skalierte Satellitenintensitäten im Vergleich zur Besselfunktion 1. Ordnung $J_1[z]$ als Theoriefunktion

skaliert durch die Hauptreflexintensitäten, gegen die mit $A_v = 17{,}87 \cdot 10^{-4}$ a berechneten Argumente z aufgetragen. Die Übereinstimmung der Stützpunkte mit dem Verlauf der Besselfunktion 1. Ordnung zeigt, daß die gemessenen Satellitenintensitäten durch das Modell der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle auch quantitativ richtig beschrieben werden.

7.2.2. Bestimmung der Amplitude der Verzerrungswelle aus den berechneten, absoluten Satellitenintensitäten

Die Berechnung der Amplitude der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle erfolgte aus den Intensitäten der Satelliten, wobei die Hauptreflexe zur Skalierung herangezogen wurden. Da diese Extinktion zeigen könnten, wird die Amplitude zusätzlich aus den berechneten, absoluten Satellitenintensitäten ermittelt (vgl. Abschnitt 6).

Die reflektierte Intensität (vgl. (A1.15)) des Satelliten 1. Ordnung ergibt sich mit der im Anhang A2.2 abgeleiteten Beziehung (A2.25) zu:

$$I(\vec{H} \pm \frac{q_v}{2\pi}) = \frac{I_o}{\omega} V_1(\omega)\, Q_s\, e^{-2M}\, J_1^2[2\pi(\vec{H} \pm \frac{q_v}{2\pi}) \cdot \vec{A}_v] \qquad (7.4)$$

mit $$Q_s = \{\frac{e^2}{mc^2}\}^2 \frac{\lambda^3}{V_{EZ}^2}\, L_o\, P_o\, f_o^2(\frac{\sin\theta}{\lambda})\, \{2+2\cos\frac{q_v}{2}\}$$

als Reflexionskoeffizient.

Der Vergleich mit der bei der Anpassung des gemessenen Intensitätsprofils durch Gaußkurven gewonnenen integralen Intensität I_{obs} liefert den Wert der Besselfunktion 1. Ordnung:

$$J_1[2\pi(\vec{H} \pm \frac{q_v}{2\pi}) \cdot \vec{A}_v] = \left(\frac{I_{obs}}{\frac{I_o}{\omega} Q_s\, V_1(\omega)\, e^{-2M}} \right)^{1/2} \qquad (7.5)$$

Aus dem dazugehörenden Argument z gewinnt man den Betrag der Amplitude zu:

$$A_v = \frac{z}{2\pi\left(H \pm \frac{q_v}{2\pi}\right)} \qquad (7.6)$$

Für die numerische Berechnung der Amplitude der Verzerrungswelle wurden die reflektierten Intensitäten der Satelliten $(2\pm q_v\ 0\ 0)$, $(4\pm q_v\ 0\ 0)$ und $(6\pm q_v\ 0\ 0)$ bei T= 44 K berechnet (siehe Tab. 8).
Dazu wurde die aus dem Comptonstreuquerschnitt gewonnene Primärstrahlintensität in Bezug auf die unterschiedliche Nachweiswahrscheinlichkeit des Festkörper- und Proportionalzählrohrs für Mo-Strahlung korrigiert.
Das streuende Kristallvolumen $V_1(\omega)$ folgte aus der im Anhang E abgeleiteten Beziehung (vgl. (E.3)) für den symmetrischen Strahlengang.

Die isotrope Verteilung der Domänen auf das leuchtende Kristallvolumen (vgl. Anhang B) wurde bei den in der 3. Spalte aufgelisteten gemessenen integralen Intensitäten berücksichtigt.Der Vergleich der berechneten und beobachteten Intensitäten liefert das Quadrat der Besselfunktion, aus dessen Argument die in der letzten Spalte aufgeführte Amplitude folgt. Daraus ergibt sich bei T = 44 K die gemittelte Amplitude der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle zu:

$$A_v = (18{,}36 \pm 2{,}75)\ 10^{-4}\ a$$

Der Fehler, mit dem die Amplitude versehen ist,setzt sich zusammen aus den Fehlern bei der Bestimmung der Primärstrahlintensität, des leuchtenden Kristallvolumens und der integralen Intensität I_{obs} .

$h \pm \frac{q_{1v}}{2\pi}$	$\frac{I_o}{\omega} V_1(\omega)\ Q_s\ e^{-2M}$ 10^6 Imp	I_{obs} 10^2 Imp	$J_1^2[2\pi(h \pm \frac{q_{1v}}{2\pi})A_{1v}]$ 10^{-6}	A_{1v} 10^{-4} a
$2-q_v$ O O	105,15 ± 26,29	90,03 ± 3,75	85,63 ± 21,41	15,48 ± 1,84
$2+q_v$ O O	80,42 ± 20,11	96,31 ± 5,52	119,76 ± 29,94	16,61 ± 1,96
$4-q_v$ O O	9,68 ± 2,41	53,91 ± 2,25	556,90 ± 138,56	19,25 ± 2,26
$4+q_v$ O O	8,45 ± 2,13	49,17 ± 2,25	581,91 ± 146,64	18,74 ± 2,22
$6-q_v$ O O	2,81 ± 0,70	40,9 ± 2,25	1454,43 ± 363,41	20,57 ± 2,43
$6+q_v$ O O	2,70 ± 0,68	37,63 ± 2,25	1394,58 ± 350,04	19,49 ± 2,31

Tab.8: Berechnung der Amplitude der Verzerrungswelle aus den berechneten Satelliten-intensitäten

7.2.3. Temperaturabhängigkeit der Amplitude der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle

Die Temperaturabhängigkeit der Amplitude wurde aus den integralen Intensitäten der im θ-2θ-Radialscan gemessenen Satelliten ($4\pm q_v$ O O) und ($6\pm q_v$ O O) bestimmt. Abb.34 zeigt die Änderung der aus diesen Werten gemittelten Amplitude der Verzerrungswelle.

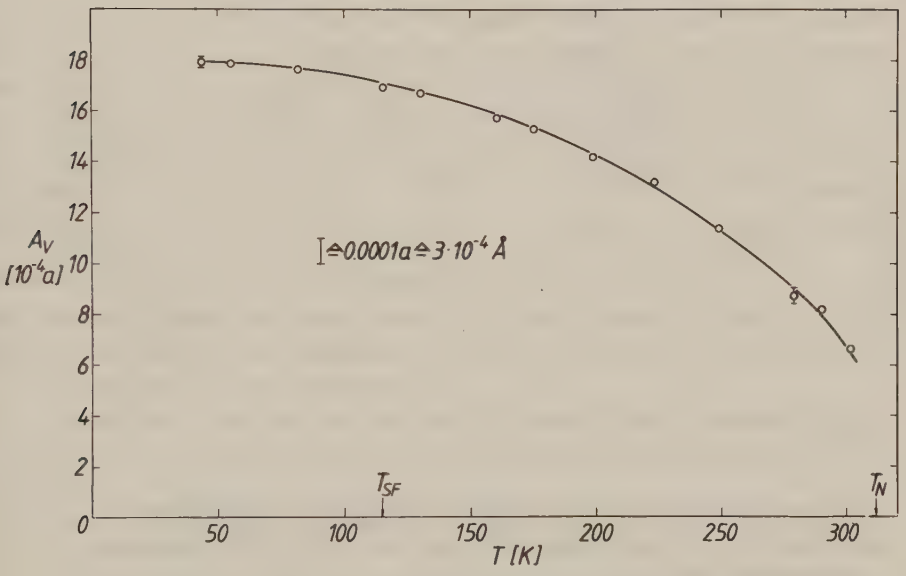


Abb.34: Amplitude A_v der harmonisch longitudinalen Verzerrungswelle in Abhängigkeit von der Temperatur

In der kontinuierlichen Zunahme der Amplitude mit sinkender Temperatur zeigt sich im Rahmen der Meßgenauigkeit keine Änderung der Amplitude als Antwort auf die Änderung in der magnetischen Ordnung beim Spin-Flip Übergang T_{SF} = 120 K.

Im Temperaturbereich 302 K $\lesssim$ T $\lesssim$ T_N konnte keine Satellitenintensität mehr aus der bei dieser Temperatur stark angewachsenen thermisch diffusen Streuung abgetrennt werden.

Eine Gegenüberstellung mit Literaturwerten in Tab.9 zeigt innerhalb der angegebenen Fehler eine gute Übereinstimmung mit den Neutronendaten von Eagen /50/ bei 110 K und 130 K sowie eine völlige Übereinstimmung mit dem Ergebnis von Pynn /39/ bei 153 K. Von Tsunoda /38/ wurde dagegen aus Röntgenbeugungsexperimenten eine zu große Amplitude ermittelt.

Autor	Experiment	Temperatur	Amplitude	eigene Meßung
Tsunoda /38/	Röntgen	153 K	0,0025±0,0005	0,0016±0,0001
Eagen /50/	Neutronen	110 K	0,0016±0,0009	0,0017±0,0001
		130 K	0,0016±0,0002	0,0017±0,0001
Pynn /39/	Neutronen	153 K	0,0016±0,0003	0,0016±0,0001

Tab.9: Vergleich der Meßergebnisse mit den in der Literatur angegebenen Amplituden

Den Unterschied in der Amplitude der $q_{\vec{v}}$-Welle, der sich aus seinen Neutronenmeßungen gegenüber den Röntgenmeßungen von Tsunoda /38/ ergab, erklärte Pynn /39/ durch eine zusätzlich vorhandene Ladungsdichtewelle. Durch die Übereinstimmung der hier beschriebenen Röntgenergebnisse mit den Neutronendaten (vgl. Tab.9) ist diese Interpretation hinfällig.

7.2.4. Intensität der Satelliten höherer Ordnungen

Dem Modell der harmonischen Verzerrungswelle entsprechend (A2.2) wird jeder Hauptreflex von unendlich vielen Paaren von Satelliten begleitet. Für die Intensität des Satellitenpaares n-ter Ordnung gilt (vgl. (A2.25)):

$$I\ (\vec{H} \mp n\frac{\vec{q}_v}{2\pi}) \sim J_n^{\,2}\ [2\pi(\vec{H} \mp n\frac{\vec{q}_v}{2\pi})\cdot \vec{A}_v]\ \{2+2\,\mathrm{sgn}\tau\ \cos\ n\frac{q_v}{2}\}$$

mit $\mathrm{sgn}\tau = +1$ für h+k+l = gerade
und $\mathrm{sgn}\tau = -1$ für h+k+l = ungerade.

Der Verlauf der Besselfunktion 2. Ordnung $J_2[z]$ in Abb.32 zeigt anschaulich, daß die Satelliten 2. Ordnung bei den in Abschnitt 5.2 beschriebenen Experimenten auf Grund des kleinen Wertes von $J_2[z]$ nicht beobachtet werden konnten.

Zur Abschätzung der Intensität kann die Reihenentwicklung der Besselfunktionen 1. Art für kleine Argumente z nach dem ersten Term abgebrochen werden (vgl. Anhang C). Dann folgt für die Intensität der Satelliten n-ter Ordnung:

$$I\ (\vec{H} \mp n\frac{\vec{q}_v}{2\pi}) \sim \left\{(\tfrac{1}{2}z)^n\ \frac{1}{n!}\right\}^2 , \qquad (7.7)$$

wobei der Abbruchfehler kleiner ist als der 2. Summand der Reihe:

$$\Delta I < \left\{(\tfrac{1}{2})^n\ \frac{1}{4(n+1)!}\ z^{n+2}\right\}^2 \qquad (7.8)$$

Im Rahmen dieser Näherung sind die nach dem Modell der harmonischen Verzerrungswelle berechneten Intensitäten der Satelliten n-ter Ordnung (n=1,2), die bei den in Abschnitt 5.2 beschriebenen Experimenten gesucht wurden, in Tab.10 zusammengefaßt.

n	$\vec{H} \mp n\frac{\vec{q}_v}{2\pi}$	$I(\vec{H} \mp n\frac{\vec{q}_v}{2\pi}) \sim$	$\Delta I \sim$	$\frac{I(\vec{H} \mp 2\frac{\vec{q}_v}{2\pi})}{I(\vec{H} \mp \frac{\vec{q}_v}{2\pi})}$
1	1 3- q_v O	2,66 10^{-4}	5 10^{-12}	5,8 10^{-6}
2	1 3-2q_v O	1,54 10^{-9}	1 10^{-16}	
1	2 2- q_v O	1,14 10^{-4}	4 10^{-12}	2,3 10^{-6}
2	2 2-2q_v O	2,66 10^{-10}	3 10^{-18}	
1	2+ q_v O O	1,39 10^{-4}	7 10^{-13}	4,2 10^{-5}
2	2+2q_v O O	5,76 10^{-9}	1 10^{-17}	

Tab.10: Für das Modell der harmonischen Verzerrungswelle berechnetes Verhältnis der Intensität der Satelliten 2. Ordnung zur Intensität der Satelliten 1. Ordnung

Die letzte Spalte von Tab.10 gibt das Verhältnis der berechneten Intensität der Satelliten 2. Ordnung (n=2) zur berechneten Intensität der Satelliten 1. Ordnung (n=1) an. Aus dem Vergleich mit den gemessenen Intensitäten der Satelliten 1. Ordnung (vgl. Abb.15 und Tab.1 in Abschnitt 5.1) folgt, daß die um den Faktor 10^5 - 10^6 geringeren Intensitäten der Satelliten 2. Ordnung bei diesen Experimenten nicht beobachtet werden konnten. Die Möglichkeit, sie bei höheren Ordnungen der Hauptreflexe zu messen, wird in Abschnitt 10 diskutiert.

Die Intensität der Satelliten n-ter Ordnung wird durch $I \sim J_n^2[z] \sim (z^n)^2$ (vgl. (A2.25) und (C.2)) und nicht durch $I \sim 1/n^4$ (n=1,2,3) /38/ beschrieben. Die Abschätzung von Tsunoda findet daher weder vom Experiment (vgl. Abschnitt 5.2) noch vom Modell her eine Berechtigung.

7.2.5. Unterschied in der modulierten Struktur oberhalb und unterhalb des Spinflip Übergangs T_{SF}

Bei der Änderung der Spinrichtung von der transversal polarisierten Welle in die longitudinal polarisierte Welle bei T_{SF} = 120 K ergibt sich, wie das Experiment zeigt, keine grundlegende Änderung des Charakters der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle. So konnte auch oberhalb der Spin-Flip Temperatur weder Intensität bei "verbotenen" Hauptreflexen noch Satelliten höherer Ordnung (n⩾2) beobachtet werden.
Im Rahmen der Meßgenauigkeit zeigt sich beim Übergang keine Diskontinuität, allerdings nehmen der Betrag des Wellenvektors q_v und der Amplitude A_v der Verzerrungswelle nur noch geringfügig zu (vgl. Abb.23 und Abb.34).

7.2.6. Abschätzung der Amplitude der Phasenmodulation für das Modell einer phasenmodulierten harmonischen Verzerrungswelle

Ist bei der Modulation des Ortsparameters zusätzlich die Phase moduliert, ergibt sich mit (vgl. (A2.33)):

$$\vec{r}'_{uvw} = \vec{r}_{uvw} + \vec{A}_v \sin\{\vec{q}_v \cdot (\vec{r}_{uvw} + \vec{r}_j) + \hat{\rho} \sin(\hat{\vec{q}} \cdot (\vec{r}_{uvw} + \vec{r}_j) + \alpha)\}$$

aus den im Anhang A2.2.3 beschriebenen Beziehungen folgende Intensitätsverteilung (vgl. (A2.39)):

$$I(\vec{H} \mp n(\frac{\vec{q}_v}{2\pi} \mp m\frac{\hat{\vec{q}}}{2\pi})) \sim J_n^2\left[2\pi(\vec{H} \mp n(\frac{\vec{q}_v}{2\pi} \mp m\frac{\hat{\vec{q}}}{2\pi})) \cdot \vec{A}_v J_m[\hat{\rho}]\right] \cdot$$

$$\cdot\{2+2\,\mathrm{sgn}\tau \cdot \cos n(\frac{\vec{q}_v}{2} + m(\frac{\hat{\vec{q}}}{2} + \alpha'))\}$$

Für n=m=0 erhält man in Übereinstimmung mit den Auslöschungsregeln der ungestörten Struktur die Intensität der Hauptreflexe und für n≥1, m=0 die Intensität der "Verzerrungswellen"-Satelliten an den Stellen $\vec{H} \pm n\frac{\vec{q}_v}{2\pi}$.

Mit n≥1, m≠0 folgt die zu einer bestimmten "Verzerrungswellen"-Satellitenordnung n gehörende "Phasen"-Satellitenintensität der Ordnung m (vgl. Abb.A3).

Nachdem in den Röntgenbeugungsexperimenten neben den auf die Verzerrungswelle zurückzuführenden Satelliten 1. Ordnung keine weiteren Satelliten beobachtet wurden, kann die obere Grenze der Amplitude der Phasenmodulationswelle aus dem 2σ-Streuuntergrund abgeschätzt werden. Diese Maximalintensität wurde aus dem Untergrund des der Halbwertsbreite eines Satelliten entsprechenden Winkelbereichs abgeschätzt.
Mit n=1 und m=1 folgt aus dem Intensitätsverhältnis des "Phasen"-Satelliten 1. Ordnung zum "Verzerrungswellen"-Satellit 1. Ordnung:

$$\frac{I(\vec{H} \mp \frac{\vec{q}_v}{2\pi} \mp \frac{\hat{\vec{q}}}{2\pi})}{I(\vec{H} \mp \frac{\vec{q}_v}{2\pi})} \simeq \frac{J_1^2[2\pi(\vec{H} \mp \frac{\vec{q}_v}{2\pi} \mp \frac{\hat{\vec{q}}}{2\pi}) \cdot \vec{A}_v \; J_1[\hat{\rho}]]}{J_1^2[2\pi(\vec{H} \mp \frac{\vec{q}_v}{2\pi}) \cdot \vec{A}_v]} \leq \frac{2\sigma}{I_{obs}} \qquad (7.9)$$

mit der Näherung $J_1[z] \simeq \frac{1}{2}z$ (siehe Anhang C) die Amplitude zu

$$\hat{\rho} \leq 2\sqrt{\frac{2\sigma}{I_{obs}}} \sim 0{,}1$$

Nicht berücksichtigt wurde bei dieser Abschätzung der Effekt der Phasenfluktuationen, der in Analogie zum gewöhnlichen Debye-Waller-Faktor e^{-2W} mit $W=\frac{1}{3}\langle(\vec{Q}\cdot\vec{u})^2\rangle$ durch die Exponentialform $e^{-2W'}$ mit $W' \cong \frac{m^2}{Q^2\hat{\rho}^2} W$ beschrieben wird /51/. In einer Abschätzung findet Overhauser /52/ für den Beitrag eines Phasons zum Exponent des Temperaturfaktors einen Wert, der 200mal größer als der eines Phonons gleicher Frequenz ist.

7.2.7. Abschätzung des Intensitätsbeitrags der magnetischen Röntgenstreuung

Die Streuung von Photonen an freien Elektronen wird durch den Thomsonstreuquerschnitt (vgl. A1.2) interpretiert, das heißt, durch die Wechselwirkung des elektrischen Feldes der elektromagnetischen Strahlung mit der Ladung des Elektrons. Die Wechselwirkung des magnetischen Feldes der elektromagnetischen Strahlung mit dem Spin des Elektrons wurde für die Streuung von Photonen am freien Elektron von Klein und Nishina (vgl. (A1.22)) berücksichtigt, jedoch nur implizit da sie über alle Spinzustände mittelten. Der Anteil dieser Wechselwirkung an der kohärenten Braggstreuung an einer antiferromagnetischen Substanz zeigte sich im Auftreten von sehr schwachen Überstrukturreflexen /53/.

Für das Intensitätsverhältnis dieser "magnetischen" Reflexe zu den gewöhnlichen "strukturellen" Reflexen gilt /54/:

$$R = \left(\frac{\lambda_c}{\lambda}\right)^2 \frac{(F_T^m(H)\,\mu\, f_m(Q))^2}{P_o\, F^2(H)} \frac{\sin^2\theta}{3} \qquad (7.10)$$

mit λ_c = Comptonwellenlänge

$F_T^m(H)$ = Strukturfaktor für das magnetische Gitter

μ = magnetisches Moment

$f_m(Q)$ = magnetischer Formfaktor

P_o = Polarisationsfaktor

$F(H)$ = Strukturfaktor

Für die in den Röntgenbeugungsexperimenten zugänglichen Reflexe folgt für das Verhältnis von "magnetischer" zu gewöhnlicher Intensität unter Berücksichtigung aller möglichen magnetischen Domänen: $R \simeq 10^{-7} - 10^{-8}$.
Damit ist die Intensität der magnetischen Röntgenstrahlung um ungefähr 2 Größenordnungen kleiner als die beobachtete Satellitenintensität und liegt damit innerhalb der angegebenen Fehlergrenzen.

8. DISKUSSION DES MODELLS EINER DURCH EINE HARMONISCHE VERZERRUNGSWELLE UND DEREN OBERWELLEN MODULIERTEN STRUKTUR

8.1. Intensität der Röntgenstrahlinterferenzen für das Modell einer harmonischen Verzerrungswelle und deren erste Oberwelle

Die komplexe Gesamtamplitude der an einer modulierten, periodischen Struktur gebeugten Röntgenstrahlinterferenzen wird analog (A1.6) beschrieben durch:

$$A = \sum_{uvw} e^{2\pi i \vec{H}\cdot\vec{r}'_{uvw}} \; f_o \sum_{j} e^{2\pi i \vec{H}\cdot\vec{r}_j}$$

Die Modulation der Ortsparameter durch eine harmonische Verzerrungswelle und deren erste Oberwelle ergibt:

$$\vec{r}'_{uvw} = \vec{r}_{uvw} + \vec{A}_v \sin(\vec{q}_v\cdot(\vec{r}_{uvw}+\vec{r}_j)+\rho) + \vec{A}_{2v}\sin(\vec{q}_{2v}\cdot(\vec{r}_{uvw}+\vec{r}_j)+\delta) \tag{8.1}$$

Mit dem im Anhang A2.2 beschriebenen Rechenschritten und unter der Berücksichtigung, daß die 1. Oberwelle die halbe Wellenlänge der Grundwelle hat, $\lambda_{2v} = \frac{1}{2}\lambda_v$, erhält man die Amplitude mit der Näherung der Laue-Funktion zu:

$$A = f_o \sum_{\nu=-\infty}^{+\infty}\sum_{\mu=-\infty}^{+\infty} \mathcal{L}\left(\vec{H}+\nu\frac{\vec{q}_v}{2\pi}+2\mu\frac{\vec{q}_v}{2\pi}\right) e^{i(\nu\rho+\mu\delta)} \cdot$$

$$J_\nu[2\pi\vec{H}\cdot\vec{A}_v]\; J_\mu[2\pi\vec{H}\cdot\vec{A}_{2v}]\cdot\{\; 1 +$$

$$e^{i\left(\nu\left(\frac{q_v}{2}+\rho'\right)+2\mu\left(\frac{q_v}{2}+\delta'\right)\right)}\; e^{\pi i(h+k+l)}\;\} \tag{8.2}$$

Die Beiträge der einzelnen Besselfunktionen zur Intensität der Hauptreflexe ($s=\nu+2\mu=0$), der Satelliten 1. Ordnung ($s=\nu+2\mu=1$), der Satelliten 2. Ordnung ($s=\nu+2\mu=2$) usw. ergibt sich aus Tabelle 11 mit den Argumenten

$$z_1 = 2\pi(\vec{H}+\nu\frac{\vec{q}_\nu}{2\pi}+2\mu\frac{\vec{q}_\nu}{2\pi})\cdot\vec{A}_\nu$$

und

$$z_2 = 2\pi(\vec{H}+\nu\frac{\vec{q}_\nu}{2}+2\mu\frac{\vec{q}_\nu}{2})\cdot\vec{A}_{2\nu} ,$$

wobei nur "zählbare"Beiträge (vgl. Abschätzung des Wertes der Besselfunktionen im Anhang C) aufgelistet sind.

$\nu =$	0	1	-1	2	0
$\mu =$	0	0	1	0	1
$s=\nu+2\mu$	0	1	1	2	2
$A \sim$	$J_0[z_1]\ J_0[z_2]$	$J_1[z_1]\ J_0[z_2]$	$J_{-1}[z_1]\ J_1[z_2]$	$J_2[z_1]\ J_0[z_2]$	$J_0[z_1]\ J_1[z_2]$
$\lvert A\rvert^2 \sim$	$J_0^2[z_1]\ J_0^2[z_2]$	$J_1^2[z_1]\ J_0^2[z_2]$	$+\ J_1^2[z_1]\ J_1^2[z_2]$	$J_2^2[z_1]\ J_0^2[z_2]$	$+\ J_0^2[z_1]\ J_1^2[z_2]$

Tab. 11: Beiträge der Einzelintensitäten der Ordnung ν und μ zur Gesamtintensität der Ordnung $s=\nu+2\mu$ für kleine Ordnungen ν und μ

Die Zusammensetzung der Gesamtintensität der Hauptreflexe ($s=\nu+2\mu=0$), der Satelliten 1. Ordnung ($s=\nu+2\mu=1$) usw. aus den Beiträgen der einzelnen Besselfunktionen zeigt anschaulich Abb.35.

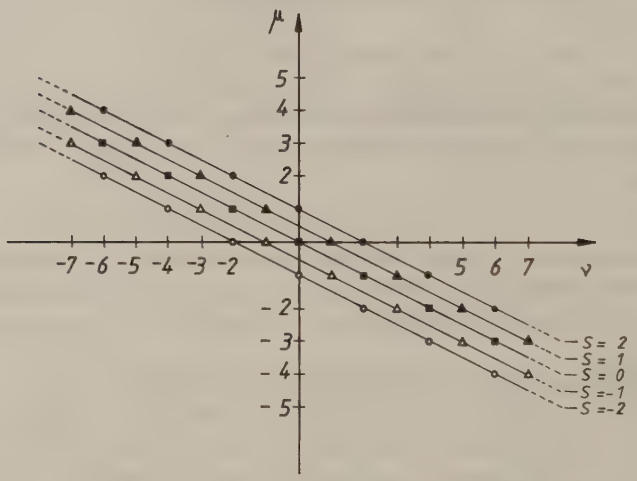


Abb.35: Beiträge zur Gesamtintensität der Hauptreflexe ($s=0$), der Satelliten 1. Ordnung ($s=1$) usw. im Modell einer harmonischen Verzerrungswelle und deren erste Oberwelle

Trägt man der Koinzidenz von Hauptreflexen und Satelliten sowie Satelliten und Satelliten Rechnung, kann die Gesamtintensität in Abhängigkeit von der Ordnung s allgemein wie folgt zusammengefaßt werden:

$$I(\underline{H} \mp s\frac{q_\nu}{2\pi}) \sim \left| \sum_{\mu} J_{s-2\mu}[z_1] \quad J_\mu[z_2] \cdot \{1+e^{i\left((s-2\mu)\left(\frac{q_\nu}{2}+\rho'\right)+\mu\left(\frac{2q_\nu}{2}+\delta'\right)\right)} e^{\pi i(h+k+l)}\} \right|^2 \tag{8.3}$$

wobei man für s=O die Beiträge zum Hauptreflex, für s=1 die Beiträge zum 1. Satelliten, usw. erhält.

8.1.1. Verallgemeinerung auf weitere Oberwellen zur harmonischen Verzerrungswelle

Die Berücksichtigung weiterer Oberwellen in der Modulation der Ortsparameter erfolgt in analoger Weise: Durch die Hinzunahme weiterer Oberwellen erhält man die Gesamtamplitude entsprechend als Vielfachsumme von Produkten von Besselfunktionen der Laufindizes $\nu,\mu,\tau,\ldots$ und den Argumenten $[z_1]$, $[z_2]$, $[z_3]$, ... Da die die Ordnung der Besselfunktion beschreibenden Laufindizes voneinander abhängen ($s=\nu+2\mu+3\tau+\ldots$), sind nur bestimmte Konfigurationen von Produkten von Besselfunktionen möglich.
Die gestreute Gesamtintensität läßt sich wieder in Abhängigkeit der Ordnung s als das Quadrat der Summe solcher Produktkonfigurationen von Besselfunktionen darstellen. Für s=O erhält man wieder die Beiträge zur Intensität der Hauptreflexe, für s=1 die Beiträge zur Intensität der Satelliten 1. Ordnung usw. .

8.2. Abschätzung der Amplitude der 1. Oberwelle aus dem Untergrund

Im Modell der harmonischen Verzerrungswelle und deren erste Oberwelle erhält man im reziproken Raum Satelliten an den Stellen $\underset{\rightarrow}{H}\pm s\frac{\underset{\rightarrow}{q}\nu}{2\pi}$ mit $s=\nu+2\mu$ und $\nu,\mu=O,1,2,\ldots$.

Nachdem im Röntgenbeugungsbild nur Satelliten 1. Ordnung an den Stellen $\underset{\rightarrow}{H}\pm\frac{\underset{\rightarrow}{q}\nu}{2\pi}$ beobachtet wurden, kann die obere Grenze des Betrags der Amplitude der ersten Oberwelle aus dem Untergrund an der Stelle des Satelliten 2. Ordnung abgeschätzt werden.

Mit obiger Beziehung lautet die Gesamtintensität des Satelliten 2. Ordnung

$$I(\vec{H} \mp 2\frac{\vec{q}_v}{2\pi}) \sim \left| \sum_{\mu} J_{2-2\mu}[2\pi(\vec{H} \mp 2\frac{\vec{q}_v}{2\pi}) \cdot \underline{\vec{A}}_v] \; J_{\mu}[2\pi(\vec{H} \mp 2\frac{\vec{q}_v}{2\pi}) \cdot \underline{\vec{A}}_{2v}] \cdot \right.$$

$$\left. \cdot \{1+e^{i((2-2\mu)(\frac{q_v}{2}+\rho') + \mu(2\frac{q_v}{2}+\delta'))} \; e^{\pi i(h+k+l)}\} \right|^2 \qquad (8.4)$$

Infolge des kleinen Wertes der Besselfunktionen der Ordnung $n \geq 1$ (vgl. Anhang C) können die Summanden, die aus Produkten von Besselfunktionen der Ordnung $n>1$ bestehen, vernachläßigt werden. Mit dieser Näherung folgt für die Intensität:

$$I(\vec{H} \mp 2\frac{\vec{q}_v}{2\pi}) \sim J_1^2[2\pi(\vec{H} \mp 2\frac{\vec{q}_v}{2\pi}) \cdot \underline{\vec{A}}_{2v}]\{2+2\,\mathrm{sgn}\tau \cos(2\frac{q_v}{2}+\delta')\} \qquad (8.5)$$

Als untere Grenze für die Beobachtbarkeit der Satelliten 2. Ordnung $(2+2q_v \; 0 \; 0)$ wird seine Intensität dem 2σ-Untergrund gleichgesetzt.
Mit dem experimentellen Befund

$I(2+2q_v \; 0 \; 0) \leq 2 \cdot 10^{-2} \quad I(2+q_v \; 0 \; 0)$ folgt aus

$J_1[2\pi(2+2q_v)\; A_{2v}] \leq 0{,}1 \quad J_1[2\pi(2+q_v)\; A_v]$

der Betrag der Amplitude der ersten Oberwelle zu

$$\boxed{|\underline{A}_{2v}| \leq 0{,}1 \quad |\underline{A}_v|}$$

Ist die Struktur von Chrom durch eine harmonische Verzerrungswelle und deren erste Oberwelle moduliert, dann ist der Betrag der Amplitude der ersten Oberwelle kleiner als ein Zehntel der Amplitude der Grundwelle.

Zu einer ähnlichen Abschätzung für die Amplitude $\underline{A}_{2v}$ der 1.Oberwelle gelangt /39/ mit $|\underline{A}_{2v}| \leq |\underline{A}_v|/6$.

9. DISKUSSION EINES MODELLS DER KOMBINATION EINER HARMONISCHEN VERZERRUNGSWELLE UND EINER HARMONISCHEN LADUNGSDICHTEWELLE

Eine modulierte Struktur, die von einer harmonischen Verzerrungswelle mit

$$\underset{\rightarrow}{r}'_{uvw} = \underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{A}_v \sin(\underset{\rightarrow}{q}_v \cdot (\underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{r}_j) + \varphi)$$

und einer harmonischen Ladungsdichtewelle mit

$$f' = f_o \left(1 + A_D \cos(\underset{\rightarrow}{q}_D \cdot (\underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{r}_j) + \delta \right)$$

erzeugt wird, ergibt mit den im Anhang A3 abgeleiteten Beziehungen folgende Intensitätsverteilung (vgl.(A3.3)):

$$\underline{I}\left(\underline{H} \mp n\frac{\underset{\sim}{q}_v}{2\pi} \mp \frac{\underset{\sim}{q}_D}{2\pi}\right) \sim \left| \underline{R}\left(\underline{H} \mp n\frac{\underset{\sim}{q}_v}{2\pi} \mp \frac{\underset{\sim}{q}_D}{2\pi}\right) \right|^2 =$$

$$N^2 f_o^2 \left| \sum_j e^{\pm in(\underset{\sim}{q}_v \cdot \underset{\sim}{r}_j + \varphi)} \left\{ \underline{J}_{\pm n}\left[2\pi\left(\underline{H} \mp n\frac{\underset{\sim}{q}_v}{2\pi}\right) \cdot \underline{A}_v\right] + \right.\right.$$

$$\left.\left. \frac{R_D}{2} \underline{J}_{\pm n}\left[2\pi\left(\underline{H} \mp n\frac{\underset{\sim}{q}_v}{2\pi} \mp \frac{\underset{\sim}{q}_D}{2\pi}\right) \cdot \underline{A}_v\right] e^{\pm i(\underset{\sim}{q}_D \cdot \underset{\sim}{r}_j + \delta)} \right\} \cdot \right.$$

$$\left. \cdot e^{2\pi i \, \underline{H} \cdot \underset{\sim}{r}_j} \right|^2$$

Bei beliebiger Modulationsrichtung und -periode der Ladungsdichtewelle in Bezug auf die Verzerrungswelle wird jeder Hauptreflex von unendlich vielen "Verzerrungswellen"-Satelliten begleitet, die ihrerseits wiederum von jeweils einem "Ladungsdichtewellen"-Satellitenpaar begleitet werden.

Für das im Anhang A3.1 berechnete Modell gleicher Modulationsrichtung und -periode ($\vec{q}_V = \vec{q}_D = \vec{q}$) der Verzerrungswelle und der Ladungsdichtewelle erhält man für die Intensität der Hauptreflexe (n=o) bei beliebiger Wahl der Phasenverschiebung ρ und ρ' der Verzerrungswelle bzw. δ und δ' der Ladungsdichtewelle gegenüber dem unmodulierten Gitter bzw. gegenüber dem Mittenatom (vgl. (A3.7)):

$$I(\vec{H}) \sim f_o^2 N^2 \{ J_o^2[2\pi \vec{H}\cdot\vec{A}_V](2+2\mathrm{sgn}\tau) + J_1^2[2\pi \vec{H}\cdot\vec{A}_V] A_D^2 \cdot$$

$$(\sin^2(\delta-\rho)+\sin^2(\delta+\delta'-\rho-\rho')+ 2\mathrm{sgn}\tau\cdot$$

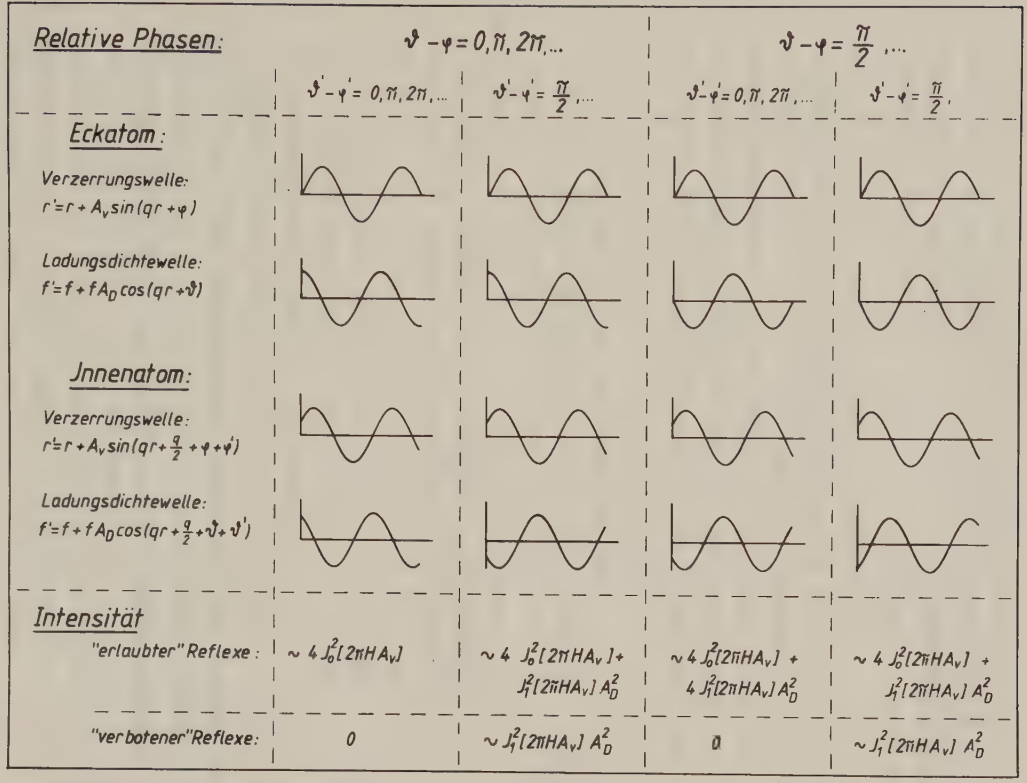
$$\sin(\delta-\rho)\sin(\delta+\delta'-\rho-\rho')) \}$$

mit $\mathrm{sgn}\tau=+1$ für h+k+l=gerade und
$\mathrm{sgn}\tau=-1$ für h+k+l=ungerade

Danach unterscheidet sich die Intensität der Hauptreflexe im Modell der Modulation durch eine harmonische Verzerrungswelle und eine harmonische Ladungsdichtewelle (vgl. (A3.7)) gegenüber der reinen Modulation durch eine Verzerrungswelle (vgl. (A2.24)) bzw. durch eine Ladungsdichtewelle (vgl. (A2.4)) durch den zusätzlichen Intensitätsbeitrag $\sim J_1^2[2\pi \vec{H}\cdot\vec{A}_V] A_D^2$.

Sein Anteil an der Gesamtintensität der Hauptreflexe wird durch die relativen Phasen zwischen der Verzerrungswelle und der Ladungsdichtewelle an den Eck- bzw. den Mittenatomen der kubisch innenzentrierten Elementarzelle bestimmt.Dies läßt die in Tab.12 zusammemgefaßten Fallunterscheidungen zu.

Ist die Phasenverschiebung zwischen Verzerrungs- und Ladungsdichtewelle für die Eckatome dieselbe wie für die Mittenatome,bleibt die Auslöschungsregel der ungestörten Struktur erhalten.Weicht die Beziehung für die Eckatome jedoch von der für die Mittenatome ab,erhält



Tab.12: Intensitäten "erlaubter" und "verbotener" Hauptreflexe für spezielle Phasendifferenzen zwischen Verzerrungs- und Ladungsdichtewelle am Eck- bzw. am Innenatom

man Intensität für "verbotene" Hauptreflexe an den Stellen h+k+l = ungerade, deren Wert für $\delta'-\rho'=\pi/2$ maximal wird.

Auf Grund des sehr kleinen Wertes des Interferenzterms $J_1^2[2\pi\vec{H}\cdot\vec{A}_V]\,A_D^2 \approx 10^{-9}$ kann die relative Phase zwischen der Verzerrungswelle und der Ladungsdichtewelle nicht mit den experimentell bestimmten Intensitäten der Hauptreflexe diskutiert werden.

Für n = 1 ist die Intensität des Satelliten 1. Ordnung an den Stellen $\vec{H}-\vec{q}/2\pi$ für beliebige Phasen durch die Beziehung (A3.11) gegeben. Zur Abschätzung der Intensität können die Summanden, die Besselfunktionen 2. Ordnung enthalten, infolge des kleinen Wertes des Arguments vernachlässigt werden (vgl. Anhang C). In dieser Näherung folgt dann mit $z = 2\pi(\vec{H}-\frac{\vec{q}}{2\pi})\cdot\vec{A}_V$ und $J_o[z] \sim 1$:

$$I(\vec{H}-\frac{\vec{q}}{2\pi}) \sim f_o^2 N^2 \{ J_1^2[z]\, 2(1+\mathrm{sgn}\tau \cos(\tfrac{q}{2}+\rho')) + \frac{A_D^2}{4} 2(1+\mathrm{sgn}\tau\cos(\tfrac{q}{2}+\delta')) + J_1[z]\,A_D\,(\cos(\delta-\rho) + \cos(\delta-\rho+\delta'-\rho')+\mathrm{sgn}\tau(\cos(\delta-\rho+\delta')+\cos(\delta-\rho-\rho'))) \} \tag{9.1}$$

Dabei entspricht der erste Term $\sim J_1^2[z]$ der Intensität des Satelliten 1. Ordnung für eine reine harmonische Verzerrungswelle und der zweite Term $\sim A_D^2$ der Intensität eines "Ladungsdichtewellen"-Satelliten.

Bei entsprechender Beziehung zwischen den Phasen erhält man als maximale Intensität:

$$I(\vec{H}-\frac{\vec{q}}{2\pi}) \sim 4\,J_1^2[z] + A_D^2 + 4J_1[z]\,A_D \tag{9.2}$$

d.h., die Intensität des Satelliten 1. Ordnung erhöht sich gegenüber dem Modell der reinen Verzerrungswelle (vgl. Abschnitt 7.2 bzw. Anhang A2.2) um den Betrag $\sim A_D^2 + 4J_1[z]\,A_D$. Da sich die gemessenen Intensitäten

der Satelliten 1. Ordnung sehr gut durch die nach dem Modell der reinen Verzerrungswelle berechneten Intensitäten beschreiben lassen (vgl.Abb.33 und Tab.8),muß der Intensitätsbeitrag der Ladungsdichtewelle innerhalb des Fehlers ΔI liegen,der sich aus der Anpassung der gemessenen Satellitenprofile durch Gaußkurven ergibt. Aus der Abschätzung:

$$\frac{A_D^2 + 4 A_D J_1[z]}{4 J_1^2[z]} \leqslant \frac{\Delta I}{I_{obs}(H \pm q_v/2\pi)} \qquad (9.3)$$

ergibt sich die obere Grenze der Amplitude der Ladungsdichtewelle als Lösung der quadratischen Gleichung zu $\boxed{A_D \leqslant 0{,}001}$

d.h.,wenn eine harmonische Verzerrungswelle(vgl.(A2.16)) und eine harmonische Ladungsdichtewelle $f' = f_o\{1+A_D\cos(\vec{q}_D\cdot(\vec{r}_{uvw}+\vec{r}_j)+\delta)\}$ die modulierte Struktur von Chrom erzeugen,kann der zusätzliche Intensitätsbeitrag der Ladungsdichtewelle bei den hier beschriebenen Experimenten nicht mehr nachgewiesen werden,wenn die maximale Abweichung des Atomformfaktors weniger als 1‰ des tabellierten Wertes beträgt.

10. VORSCHLAG ZUR MESSUNG DER SATELLITEN MIT DER γ-STRAHLUNG EINER Au^{198}-QUELLE

Wie in den vorangegangenen Abschnitten gezeigt wurde, werden die bei den Röntgenbeugungsexperimenten beobachteten Intensitäten der Haupt- und Satellitenreflexe vollständig durch die für das Modell der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle absolut berechneten Intensitäten der Haupt- und Satellitenreflexe beschrieben.
Dabei liefert das Modell der harmonischen Verzerrungswelle für die Intensität die folgende Proportionalität

(vgl. (A2.25)) :

$$I(\vec{H}\pm n\frac{\vec{q}_v}{2\pi}) \sim J_n^2[2\pi(\vec{H}\pm n\frac{\vec{q}_v}{2\pi})\cdot\vec{A}_v]\ \{\ 2 + 2\ \mathrm{sgn}\tau\ \cos n\frac{q_v}{2}\ \}$$

mit $\mathrm{sgn}\tau = +1$ für h+k+l = gerade
und $\mathrm{sgn}\tau = -1$ für h+k+l = ungerade

Die Intensität der Hauptreflexe folgt für n = 0, die der Satelliten 1.Ordnung für n = 1, usw. .

Im Rahmen der Meßgenauigkeit konnte keine zusätzliche Intensität, die auf eine eventuell vorhandene Ladungsdichtewelle zurückzuführen wäre, gemessen werden.

Dieses Ergebnis kann durch das Messen von Hauptreflexen höherer Ordnungen sowie der sie begleitenden Satelliten überprüft werden. In Abb. 36 sind die Besselfunktionen 1.Art der Ordnung 0, 1 und 2 als Ausschnittsvergrößerung von Abb. 31 dargestellt. Ergänzend sind auf der Abszisse die Ordnungen der Hauptreflexe eingezeichnet.

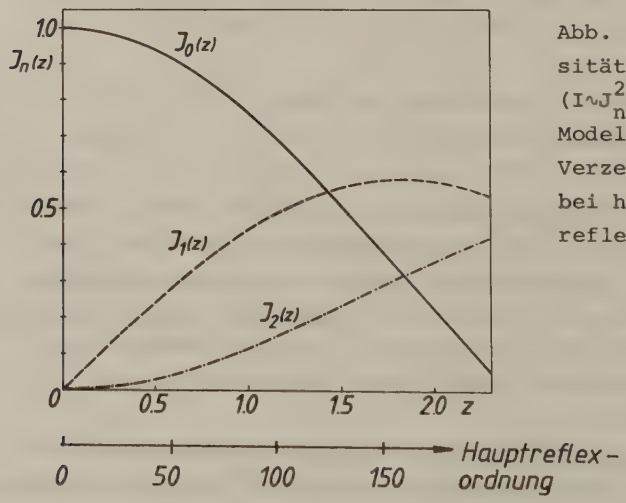


Abb. 36: "Intensitätsänderung" ($I\sim J_n^2$) für das Modell einer harm. Verzerrungswelle bei hohen Hauptreflexordnungen

Eine zusätzliche Ladungsdichtewelle müßte sich sowohl durch eine gegenüber dem Verlauf der O.ten Besselfunktion geringere Intensitätsabnahme als auch durch einen gegenüber der 1. und 2. Ordnung stärkeren Anstieg in der Intensität mit der Ordnung der Hauptreflexe zeigen. Insbesondere würde die Übereinstimmung von Haupt- und Satellitenreflexintensität bei einem höheren Intensitätswert liegen. Weiterführende Schlüsse (z.B. über die Phase (vgl. Abschnitt 9, Tab. 12)) könnten aus der z-Abhängigkeit der Schnittpunkte der verschiedenen Ordnungen der Besselfunktionen gezogen werden.

Zur Messung dieser hohen Hauptreflexordnungen (mit einer üblichen Röntgenquelle, zum Beispiel der Mo-Röhre (E_{K_α} = 17.444 KeV) kann gerade bis zur 6. Ordnung der Hauptreflexe gemessen werden) bietet sich die 412 KeV Linie von Au^{198} an, wie sie z.B. im γ-Diffraktometer von /56/ verwendet wird. Bei einer Wellenlänge von $\lambda \approx 0.03$ Å liegt der Beugungswinkel des Hauptreflexes (100 0 0) bei $2\theta \sim 63^\circ$ und der des Hauptreflexes (150 0 0) bei $2\theta \sim 103^\circ$). Die bei der Messung auftretenden Probleme wie Auflösung (die 150. Ordnung liegt 1° in 2θ neben der 151. Ordnung), geringe Intensität ($I \sim \lambda^3$, $f(\sin\theta/\lambda)$) sowie der hohe Streuuntergrund (Comptoneffekt) dürften jedoch nicht unerheblich sein. Für eine Abschätzung wurde die Intensität des Satelliten (150 + q_v 0 0) mit der des Satelliten (2 + q_v 0 0) (vgl. Gleichung (7.4)) verglichen. Dazu wurden gleiche Primärstrahlintensität und gleiches leuchtendes Kristallvolumen vorausgesetzt. Der Atomformfaktor ergab sich für den Beugungswinkel des Satelliten (150 + q_v 0 0) durch Extrapolation /64/ zu $f(\sin\theta/\lambda) \sim f(26.1) \sim 1$.

Für das Verhältnis des Quadrats der Besselfunktionen 1. Ordnung folgt

$$J_1^2 \left[2\pi (150 + q_v/2\pi) A_v \right] \Big/ J_1^2 \left[2\pi (2 + q_v/2\pi) A_v \right] \simeq 2 \cdot 10^4 .$$

Demgegenüber verringern jedoch die kleine Wellenlänge der γ-Strahlung ($\lambda \sim 0{,}03$ A) im Vergleich zur Mo-Strahlung ($\lambda \sim 0{,}71$ A) sowie die kleineren Beiträge des Lorentz- und Atomformfaktors die Intensität des Satelliten ($15O+q_v$ O O) gegenüber dem Satelliten ($2+q_v$ O O) um $2{,}5 \cdot 10^{-7}$. Damit ist für die Intensität des Satelliten ($15O+q_v$ O O) gegenüber der des Satelliten ($2+q_v$ O O) ein um den Faktor $5 \cdot 10^{-3}$ geringerer Wert zu erwarten.

11. ZUSAMMENFASSUNG

In der vorliegenden Arbeit wurden mit einem hochauflösenden fokussierenden Einkristalldiffraktometer die Satellitenreflexe von Chrom im Temperaturbereich von $312\ K \geq T \geq 40\ K$ gemessen. Es wurden verschiedene Modulationsmodelle diskutiert und dafür das Satellitenmuster sowie die Absolut-Intensitäten der Satelliten berechnet. Der Vergleich mit dem beobachteten Beugungsbild und den gemessenen Intensitäten ergibt, daß bei Chrom eine h a r m o n i s c h e l o n g i t u d i n a l e V e r z e r r u n g s w e l l e vorliegt.

Dabei wurden erstmals bei Röntgenbeugungsexperimenten die charakteristischen Merkmale der zugrundeliegenden Modulationswelle systematisch im gesamten Temperaturbereich von $312\ K \geq T \geq 40\ K$ untersucht und der Verlauf des Wellenvektors q_v und der Amplitude A_v der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle bestimmt. Die Temperaturabhängigkeit des Wellenvektors q_v entspricht der bei Neutronenbeugungsexperimenten /55/ ermittelten Temperaturabhängigkeit des Wellenvektors q_m der inkommensurablen Spindichtewelle ($q_v = 2q_m$). Die Amplitude A_v stimmt mit den von /39, 50/ bei drei verschiedenen Temperaturen bestimmten Werten überein.

Eine Änderung des Charakters der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle konnte bei der Änderung der magnetischen Ordnung am Spin-Flip Übergang bei $T_{SF} = 120\ K$ von der transversal polarisierten Spindichtewelle in die longitudinal polarisierte Spindichtewelle nicht beobachtet werden.

Um die gemessenen Intensitäten mit den für die verschiedenen Modelle absolut berechneten Intensitäten vergleichen zu können, wurde die am Ort der Probe vorliegende Primärstrahlintensität aus dem mit einem Ge-Festkörperdetektor gemessenen Comptonstreuquerschnitt bestimmt. Dabei ergab sich Übereinstimmung mit den Vergleichswerten aus der Absorptionsfolienmethode bzw. aus den Hauptreflexintensitäten.

Bei der Diskussion der Modulationsmodelle für Chrom konnte das Modell der Ladungsdichtewelle mit dem Argument der Indexabhängigkeit der beobachteten Satellitenintensitäten ausgeschlossen werden.
Dagegen wurden die gemessenen Intensitäten der Haupt- und Satellitenreflexe vollständig durch die charakteristischen Merkmale des für das Modell einer harmonischen Verzerrungswelle berechneten Beugungsbildes beschrieben.
Die Polarisation der Verzerrungswelle folgte aus der Intensitätsverteilung in Richtung bzw. senkrecht zur Richtung der Hauptachsen. Die sehr gute Übereinstimmung der aus den skalierten Satellitenintensitäten bestimmte Amplitude A_v mit der aus dem Modell der harmonischen Verzerrungswelle absolut bestimmten Amplitude A_v zeigt, daß sich die gemessenen Satellitenintensitäten auch quantitativ vollständig durch das Modell der harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle beschreiben lassen.

Aus der Abschätzung der Intensität der magnetischen Röntgenstreuung als Folge der Wechselwirkung der Photonen mit dem magnetischen Moment des Elektrons im Vergleich zur gewöhnlichen Braggintensität folgt, daß die magnetische Dipolstreuung der Röntgenstrahlung keinen meßbaren Beitrag zur Satellitenintensität liefert.

Bei der Diskussion des Modells einer durch eine harmonische Verzerrungswelle und deren Oberwellen modulierten Struktur wurde die obere Grenze der Amplitude A_{2v} der ersten Oberwelle aus dem 2σ- Untergrund zu $|A_{2v}| \leq |A_v|/10$ abgeschätzt.

Im Modell einer modulierten Struktur, die von einer harmonischen Verzerrungswelle und einer harmonischen Ladungsdichtewelle erzeugt wird, folgt der Maximalwert der Amplitude der Ladungsdichtewelle zu $A_D \leq 0{,}001$, d.h. zu $\leq$ 1% des Atomformfaktors.

Durch die Optimierung des Meßplatzes, bei der eine maximale Primärstrahlintensität am Ort der Probe neben einem minimalen Streuuntergrund im Zählrohr im Vordergrund stand, konnte die Satellitenintensität gegenüber den Messungen anderer Experimentatoren /30/ um mehr als eine Größenordnung und das Peak zu Untergrund Verhältnis des Satelliten (2 2-q_v 0) gegenüber 2:1 auf 7:1 (bzw. auf 13:1 für die Satelliten des Hauptreflexes (310)) verbessert werden. Bei einigen Messungen konnten noch Satelliten neben Hauptreflexen nachgewiesen werden, deren Intensitätsverhältnis $1:10^6$ betrug.
Dadurch war es möglich geworden, im reziproken Raum nach weiteren Satelliten erlaubter Hauptreflexe sowie nach Satelliten strukturell verbotener Hauptreflexe zu suchen.

ANHANG A. STREUTHEORIE

In diesem Abschnitt werden die Grundlagen für die absolute Berechnung der an einer periodischen Struktur gestreuten Bragg- und Comptonintensität zusammengestellt. Außerdem werden die Intensitäten und die charakteristischen Merkmale der an einer modulierten Struktur gebeugten Röntgenstrahlen am Beispiel verschiedener Modulationsmodelle abgeleitet.

A 1 Streuung von Röntgenstrahlen an einer periodischen, unmodulierten Struktur

A 1.1 Intensität der elastisch kohärent gestreuten Röntgenstrahlen

Die Elektronendichteverteilung eines ausgedehnten Kristalls, die im Sinne der Streutheorie als Streukraftdichte interpretiert wird, läßt sich aufbauen aus der Elektronendichte des Atoms gefaltet mit einer Funktion für die Zelle gefaltet mit einer Funktion für das Gitter gefaltet mit der thermischen Dichte.

$$\varrho(\underline{r}) = \varrho_{Atom} * f_{Zelle} * 1_{Gitter} * \varrho_{therm.}$$

Die im Streuexperiment beobachtete Intensität erhält man dann als Betragsquadrat der Fouriertransformierten dieser Dichte:

$$I(\underline{Q}) \sim |A(\underline{Q})|^2 = \left|\mathfrak{F}(\varrho(\underline{r}))\right|^2 \qquad \text{(A 1.1)}$$

Die Zellfunktion, die am Ort der Atome ihre Maxima hat, läßt sich beschreiben durch

$$f_{Zelle} = \sum_j \delta(\underline{r} - \underline{r}_j) = \sum_j \delta(\underline{r} - [x_j\underline{a} + y_j\underline{b} + z_j\underline{c}])$$

$$\text{mit } 0 \leq x_j, y_j, z_j < 1 . \qquad \text{(A 1.2)}$$

Damit erhält man für die Dichteverteilung einer Elementarzelle

(A 1.3)

$\varrho_{EZ}(\underline{r}) = \sum_{s} \sum_{j} \varrho_s * \delta(\underline{r}-\underline{r}_{sj})$, wobei über die verschiedenen Punktlagen j der Atomsorten s summiert wird. Ihre Fouriertransformierte beschreibt den Strukturfaktor:

$$F(\underline{Q}) = \mathcal{F}\left(\varrho_{EZ}(\underline{r})\right) = \sum_{s,j} f_s(\underline{Q})\, e^{i\underline{Q}\cdot\underline{r}_{sj}} \qquad \text{(A 1.4)}$$

Durch Fouriertransformation der Funktion für das Gitter erhält man die Lauefunktion, wobei gilt

$$\mathcal{F}(1_{Gitter}) = \mathcal{F}\left(\sum_{uvw} \delta(\underline{r}-\underline{r}_{uvw})\right) = \sum_{uvw} e^{i\underline{Q}\cdot\underline{r}_{uvw}} = \mathcal{L}(\underline{Q}) \qquad \text{(A1.5)}$$

Die Fouriertransformierte der thermischen Dichte ergibt den Debye-Waller Faktor.

Mit $\underline{Q} = 2\pi\underline{\tilde{H}}$ für den Streuvektor wird die komplexe Amplitude von Röntgenstrahlen, die an einer periodischen Struktur gebeugt werden, durch folgenden Ausdruck beschrieben:

$$A = \sum_{uvw} e^{2\pi i\underline{\tilde{H}}\cdot\underline{r}_{uvw}} \sum_{s} \sum_{j} f_s\, e^{2\pi i\underline{\tilde{H}}\cdot\underline{r}_{sj}} \qquad \text{(A 1.6)}$$

$\underline{\tilde{H}} = (\tilde{h}, \tilde{k}, \tilde{l})$ mit $\tilde{h}$, $\tilde{k}$, $\tilde{l}$, kontinuierlich und (u, v, w) sind Vektoren des reziproken bzw. des direkten Gitters, $\underline{a}^*$, $\underline{b}^*$, $\underline{c}^*$ und $\underline{a}$, $\underline{b}$, $\underline{c}$ sind die Basisvektoren des reziproken bzw. direkten Gitters.
Den vorhergehenden Beziehungen entsprechend ist:

$\underline{r}_{uvw} = u\underline{a} + v\underline{b} + w\underline{c}$ ein Vektor zum Eckpunkt der Elementarzelle

$\underline{r}_j = x_j\underline{a} + y_j\underline{b} + z_j\underline{c}$ ein Vektor zum j-ten Atom der Elementarzelle

$\underline{\tilde{H}} = \tilde{h}\underline{a}^* + \tilde{k}\underline{b}^* + \tilde{l}\underline{c}^*$ ein beliebiger Vektor im reziproken Raum

$\underline{H} = h\underline{a}^* + k\underline{b}^* + l\underline{c}^*$ ein beliebiger reziproker Gittervektor und

f_s der Atomformfaktor der Atomsorte s.

Die Laue-Funktionen

$$\mathcal{L}(2\pi\tilde{\underset{\rightarrow}{H}}) = \sum_{u,v,w} e^{2\pi i \tilde{\underset{\rightarrow}{H}} \cdot \underset{\rightarrow}{r}_{uvw}} = \sum_{u=0}^{N_1-1} e^{2\pi i \tilde{h} u} \sum_{v=0}^{N_2-1} e^{2\pi i \tilde{k} v} \sum_{w=0}^{N_3-1} e^{2\pi i \tilde{l} w}$$

stellen geometrische Reihen dar, für deren Summe gilt

$$\mathcal{L}(2\pi\tilde{h}) = \sum_{u=0}^{N_1-1} e^{2\pi i \tilde{h} u} = e^{\pi i \tilde{h}(N_1-1)} \frac{\sin \pi \tilde{h} N_1}{\sin \pi \tilde{h}}$$

N_1 gibt die Zahl der Elementarzellen innerhalb des Kohärenzbereichs in Richtung $\underset{\rightarrow}{a}$ an. Wenn N_1 groß ist, und dies ist die einzige Voraussetzung, die gemacht wird, gilt nach der Regel von l'Hospital /57/:

$$\lim_{\tilde{h} \to h=\text{ganz}} \frac{\sin \pi \tilde{h} N_1}{\sin \pi \tilde{h}} = N_1$$

Im Rahmen dieser Näherung folgt dann

$$\mathcal{L}(2\pi\underset{\rightarrow}{H}) = N_1 \cdot N_2 \cdot N_3 = N \qquad \text{(A1.7)}$$

Die Amplitude der Röntgenstrahlen, die am kubisch innenzentrierten Gitter von Chrom im magnetisch ungeordneten Zustand ($T > T_N$) gebeugt werden, erhält man dann zu:

$$A(2\pi\underset{\rightarrow}{H}) = \mathcal{L}(2\pi\underset{\rightarrow}{H})\, f_o\, (1 + e^{\pi i (h+k+l)}) \qquad \text{(A1.8)}$$

und für die Intensität folgt gemäß (A1.1) :

$$I(2\pi\underset{\rightarrow}{H}) \sim |A(2\pi\underset{\rightarrow}{H})|^2 = N^2 f_o^2 (2 + 2\,\mathrm{sgn}\tau) \qquad \text{(A1.9)}$$

mit $\mathrm{sgn}\tau = +1$ für $h+k+l$= gerade
und $\mathrm{sgn}\tau = -1$ für $h+k+l$=ungerade,
entsprechend den Auslöschungsregeln der Raumgruppe Im3m .

A 1.1.1 Integrales Reflexionsvermögen

In der kinematischen Streutheorie wird die integrale Streuleistung eines kleinen Einkristallvolumens δV beschrieben durch /58/:

$$I = I_o \left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2 \frac{\lambda^3}{v_{EZ}^2} L_o P_o |F(\underline{H})|^2 \delta V$$

$$= I_o Q \delta V \quad , \qquad \text{(A 1.10)}$$

wobei I_o [Impuls / Zeit · Fläche] die Leistungsdichte des Primärstrahls und Q [Länge^{-1}] den Reflexionskoeffizienten beschreibt, der den klassischen Elektronenradius (e^2/mc^2), die Wellenlänge λ, das Volumen der Elementarzelle v_{EZ}, den Lorentz- und Polarisationsfaktor $L_o P_o$ und den in A 1.1 definierten Strukturfaktor $F(\underline{H})$ zusammenfaßt.

Wird das Kriställchen mit der konstanten Winkelgeschwindigkeit ω durch die Reflexionsstellung θ_o gedreht, gilt für die insgesamt gestreute Leistung

$$I = E \cdot \omega \quad ,$$

wobei E die Gesamtenergie unter der Reflexionskurve bedeutet.
Damit wird das integrale Reflexionsvermögen beschrieben durch

$$\frac{E \cdot \omega}{I_o} = Q \delta V \quad ,$$

dessen anschauliche Bedeutung aus Abb. A1 folgt.
Beim Drehen des Kristalls durch die Reflexionsstellung wird mit dem Zählrohr die in Abb. A1 dargestellte Reflexionskurve über dem Streuuntergrund U registriert.

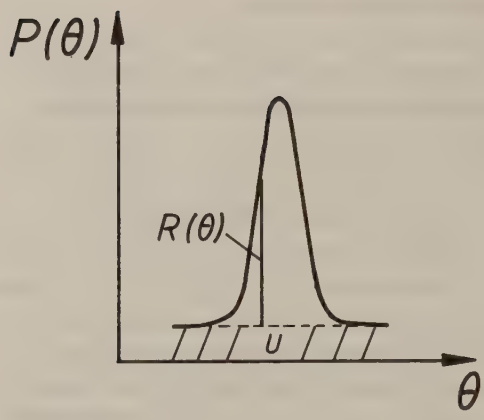


Abb. A1:
Reflexionskurve P(θ)

Die Breite ε der Reflexionskurve wird durch die Perfektion des Einkristalls und durch die Divergenz des Primärstrahls bestimmt. In jeder Stellung θ wird die reflektierte Leistung $P(\theta) = R(\theta) / I_o$ gemessen. Die Fläche unter der Kurve beschreibt das integrale Reflexionsvermögen ϱ_{hkl}:

$$\varrho_{hkl} = \int_{\theta-\varepsilon}^{\theta+\varepsilon} P(\theta)\, d\theta \qquad \text{(A 1.12)}$$

Mit $d\theta = \omega dt$ folgt daraus:

$$\varrho_{hkl} = \frac{\omega}{I_o} \cdot \int R(\theta)\, dt = \frac{\omega \cdot E_{hkl}}{I_o} \qquad \text{(A 1.13)}$$

wobei $E_{hkl} = \int R(\theta) dt$ die während der Drehung durch die Reflexionsstellung abgebeugte Energie des Reflexes (hkl) ist.

Damit gilt für den Zusammenhang zwischen integralem Reflexionsvermögen und der beobachtbaren Größe $\int R(\theta)/I_o d\theta$:

$$\frac{E\cdot\omega}{I_o} = Q\delta V = \int \frac{R(\theta)}{I_o}\, d\theta \qquad \text{(A 1.14)}$$

Durch Integration über das Volumen (vgl. Anhang E) erhält man für die Gesamtintensität eines Reflexes

$$I = \frac{I_o}{\omega} \left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2 \frac{\lambda^3}{v_{EZ}^2} V_1(\omega)\, L_o P_o \left|F(\underline{H})\right|^2 \qquad \text{(A 1.15)}$$

Bei der im Experiment angewandten Beugungsgeometrie werden der Lorentz- und Polarisationsfaktor durch

$$L_o = \frac{1}{\sin 2\theta} \quad \text{und} \quad P_o = \frac{1+\cos^2 2\theta_{Mono}\cos^2 2\theta}{1+\cos^2 2\theta_{Mono}} \qquad \text{(A 1.16)}$$

beschrieben /59/.
Die Berücksichtigung der Temperaturbewegung durch den Debye-Waller Faktor e^{-2M} erfolgt in der in /59/ angegebenen Weise durch $M=B \sin^2\theta/\lambda^2$ mit

$$B = \frac{6\,h^2}{mk\Theta}\left\{\frac{\phi(x)}{x} + \frac{1}{4}\right\} \quad \text{und} \quad X = \Theta/T.$$

A 1.2 Inelastisch inkohärent gestreute Comptonintensität

Im Rahmen der klassischen elektrodynamischen Streutheorie wird bei der Streuung unpolarisierter Röntgenstrahlung an einem einzelnen freien Elektron die unter dem Raumwinkel abgestrahlte Leistung nach Thomson durch den differentiellen Wirkungsquerschnitt wie folgt beschrieben:

$$\frac{d\sigma_{Thom}}{d\Omega} = \left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2 \left(\frac{1+\cos^2 2\theta}{2}\right) \qquad \text{(A 1.17)}$$

Die Thomson'sche Streuformel stellt für jedes Elektron die Summe aus unmodifizierter und modifizierter Strahlung dar. Damit ergibt sich für die Streuleistung eines Elektrons unter dem Winkel 2θ im Abstand r

$$I_{Thoms} = I_o \left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2 \frac{1}{r^2} \left(\frac{1+\cos^2 2\theta}{2}\right)$$

$$= I_o \left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2 \frac{1}{r^2} \left(\frac{1+\cos^2 2\theta}{2}\right)\left\{f_e^{\,2} + i_e\right\} \quad \text{(A 1.18)}$$

mit dem Streufaktor pro Elektron $f_e = \int \varrho(\underset{\rightarrow}{r}) e^{i\underset{\rightarrow}{k}\underset{\rightarrow}{r}}\, d\underset{\rightarrow}{r}$ und $i_e = 1-f_e^{\,2}$ für die Intensität der inelastischen Streuung pro Elektron.

Da die inelastische Streuung von verschiedenen Elektronen inkohärent ist, erhält man die Intensität der inelastischen Streuung an einem Atom als die Summe der Intensitäten der inelastischen Streuung der Elektronen

$$I_{Atom}^{Inkoh} = I_{Thom} \cdot \sum_n i_e = I_{Thom} \left(Z - \sum_{n=1}^{Z} |f_{en}|^2\right) \quad \text{(A 1.19)}$$

Die elastisch kohärente Streuung der verschiedenen Elektronen ergibt die Intensität

$$I_{Atom}^{Koh} = I_{Thom} \cdot \left|\sum_{n=1}^{Z} f_{en}\right|^2 \quad \text{(A 1.20)}$$

Unter Berücksichtigung des Pauli-Prinzips und der quantenmechanischen Eigenschaften der Elektronen im Atom /59/ folgt für die an einem Atom gestreute Gesamtintensität

$$I_{Atom} = I_{Atom}^{Koh} + I_{Atom}^{Inkoh}$$

$$= I_{Thom} \cdot \left\{ \left| \sum_{n=1}^{Z} f_{nn} \right|^2 + Z - \sum_{n=1}^{Z} |f_{nn}|^2 \right.$$

$$\left. - \sum_{\substack{n=1 \\ n \neq m}}^{Z} |f_{nm}|^2 \right\} \qquad \text{(A 1.21)}$$

mit $f_{nm} = \int \psi_n^* \, e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \, \psi_m dV$, wobei ψ_m die Wellenfunktion des m-ten Elektrons im Atom ist.

Der die inelastisch inkohärent gestreute Intensität beschreibende Term muß noch durch einen intensitätsmindernden Term verbessert werden. Diesen Korrekturterm liefert im allgemeinen Fall der von Klein und Nishina /60/ aus der Dirac-Theorie, die gegen Lorentztransformation invariant ist und damit für alle Geschwindigkeiten gilt, abgeleitete differentielle Wirkungsquerschnitt zu:

$$\frac{d\sigma_{K\text{-}N}}{d\Omega} = \left(\frac{e^2}{mc^2} \right)^2 \left[\frac{1}{1 + \frac{h\nu}{mc^2} (1-\cos 2\theta)} \right]^3$$

$$\cdot \left\{ \left(\frac{1 + \cos^2 2\theta}{2} \right) + \frac{\left| \frac{h\nu}{mc^2} \right|^2 (1-\cos 2\theta)^2}{2 \left[1 + \frac{h\nu}{mc^2} (1-\cos 2\theta) \right]} \right\} \qquad \text{(A 1.22)}$$

Der erste Summand der geschweiften Klammer ist die in der Thomson'schen Streuformel gefundene polarisierte

klassische Komponente der gestreuten Energie. Der zweite Summand, der Klein-Nishina Korrekturterm, beschreibt die Wechselwirkung zwischen dem magnetischen Vektor $\underset{\rightarrow}{H}$ der einfallenden elektromagnetischen Welle und dem magnetischen Dipolmoment $\underset{\rightarrow}{\mu}$ des Elektrons. Im Fall der in den Röntgenbeugungsexperimenten benutzten Wellenlängen reduziert sich die Formel von Klein und Nishina auf den Breit-Dirac Faktor /61, 62/ R:

$$R = \left(\frac{\nu'}{\nu}\right)^3 = \left[\frac{1}{1 + \frac{h\nu}{mc^2}(1-\cos 2\theta)}\right]^3$$

$$= \left[\frac{1}{1 + \frac{2h\lambda}{mc}\cdot\left(\frac{\sin\theta}{\lambda}\right)^2}\right]^3 \quad , \qquad \text{(A 1.23)}$$

der in dem Verhältnis zwischen der Streuung an einem Rückstoßelektron zur Streuung an einem Elektron in Ruhe eine Wellenlängenänderung auf Grund des Dopplereffektes berücksichtigt.

Da als streuende Elektronen nur die Valenz- oder Leitungselektronen mit Bindungsenergien $E_B \cong 10eV$ in Frage kommen, ist die Voraussetzung freier Elektronen nie streng erfüllbar. Für die Energien der Röntgenstrahlen gilt $E_B \simeq 10eV << h\nu_o \simeq 17KeV$, so daß die Abweichung vom Ideal des freien Elektrons klein ist.
Unter der Annahme, daß die an gebundenen Elektronen inelastisch inkohärent gestreute Intensität in demselben Verhältnis vermindert wird, folgt

$$I_{Atom}^{Inkoh} = I_{Thom}\cdot R\left\{Z - \sum_{n=1}^{Z}|f_{nn}|^2 - \sum_{n\neq m}|f_{nm}|^2\right\} = I_{Thom}\cdot R\left\{Z-F\right\} \quad \text{(A 1.24)}$$

Die auf Hartree-Fock Wellenfunktionen basierenden Comptonintensitäten (Z-F) sind in Abhängigkeit von $\sin\theta / \lambda$ für verschiedene Elemente tabelliert /48, 59/.

Damit erhält man die inelastisch inkohärente Streuleistung eines Volumens V, das aus $N = V/v_{EZ}$ Elementarzellen des Volumens v_{EZ} mit l Atomen pro Elementarzelle besteht, zu:

$$I^c = I_{Thom} \cdot l \cdot \frac{V}{v_{EZ}} \cdot R \cdot (Z\text{-}F) \qquad \text{(A 1.25)}$$

Die vom Zählrohr unter dem Raumwinkel $\Delta\Omega^c$ registrierte Comptonintensität lautet dann:

$$I^c = I_o \{\frac{e^2}{mc^2}\}^2 \frac{1+\cos^2\theta}{2} \frac{1}{v_{EZ}} V R (Z\text{-}F) \qquad \text{(A 1.26)}$$

Für den Vergleich mit der im Experiment gemessenen Comptonintensität (vgl. Abschnitt 6.2.3) muß die am Monochromatoreinkristall polarisierte Röntgenstrahlung in Gleichung (A 1.26) durch den entsprechenden Polarisationsfaktor P_o (vgl. (A 1.16)) berücksichtigt werden. Mit den im Anhang E und D 2.2 abgeleiteten Beziehungen für das leuchtende Kristallvolumen $V_1(\omega)$ (vgl. (E.7)) und den Raumwinkel $\Delta\Omega^c$ (vgl. (D.22)) ergibt sich die inelastisch inkohärent gestreute Comptonintensität zu:

$$I^c = I_o \{\frac{e^2}{mc^2}\}^2 P_o \frac{2}{v_{EZ}} V_1(\omega) R (Z\text{-}F) \frac{\Delta F^c}{4\pi t^2} \qquad \text{(A 1.27)}$$

A 2 Streuung von Röntgenstrahlen an einer modulierten Struktur

A 2.1 Theorie der Modulation der Streukraftdichte (Ladungsdichtewelle)

Im Modell einer Ladungsdichtewelle wird das Streuvermögen an den Atomorten einer Struktur moduliert. Dies wird durch einen Atomformfaktor, der eine periodische Funktion des Ortes ist, beschrieben /8/:

$$f = f_o \, (1 + A_D \cos \, (\underset{\rightarrow}{q}_D \cdot (\underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{r}_j) + \delta)) \qquad \text{(A 2.1)}$$

Dabei gibt f_o den Atomformfaktor der unmodulierten Struktur an, A_D und $\underset{\rightarrow}{q}_D$ sind die Amplitude und der Wellenvektor der Dichtewelle,
δ beschreibt die Phasenverschiebung der Dichtewelle gegenüber dem unmodulierten Gitter und δ' berücksichtigt die zusätzliche Phasenverschiebung der Dichtewelle am Mittenatom gegenüber dem Eckatom des innenzentrierten Gitters von Chrom.

Damit lautet die komplexe Gesamtamplitude (vgl. A 1.6):

$$A(\underset{\rightarrow}{\tilde{H}}) = \sum_{uvw} e^{2\pi i \underset{\rightarrow}{\tilde{H}} \cdot \underset{\rightarrow}{r}_{uvw}} \sum_j f_o (1 + A_D \cos (\underset{\rightarrow}{q}_D \cdot (\underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{r}_j) + \delta)) \cdot e^{2\pi i \underset{\rightarrow}{\tilde{H}} \cdot \underset{\rightarrow}{r}_j}$$

$$= \sum_j f_\varphi \left\{ \mathcal{L}(\underset{\rightarrow}{\tilde{H}}) + \frac{A_D}{2} \left[\mathcal{L}(\underset{\rightarrow}{\tilde{H}} + \frac{\underset{\rightarrow}{q}_D}{2\pi}) \cdot e^{i(\underset{\rightarrow}{q}_D \cdot \underset{\rightarrow}{r}_j + \delta)} + \mathcal{L}(\underset{\rightarrow}{\tilde{H}} - \frac{\underset{\rightarrow}{q}_D}{2\pi}) e^{-i(\underset{\rightarrow}{q}_D \cdot \underset{\rightarrow}{r}_j + \delta)} \right] \right\} \cdot e^{2\pi i \underset{\rightarrow}{\tilde{H}} \cdot \underset{\rightarrow}{r}_j} \qquad \text{(A 2.2)}$$

Bei Berücksichtigung der beiden Punktlagen O, O, O und 1/2, 1/2, 1/2 erhält man im Rahmen der Laue-Näherung mit dem Übergang $\tilde{\vec{H}} = (\tilde{h}, \tilde{k}, \tilde{l})$ mit $\tilde{h}, \tilde{k}, \tilde{l}$, kontinuierlich nach $\vec{H} = (h, k, l)$ mit $h, k, l = 0, \pm 1, \pm 2 \ldots$ für die Amplitude:

$$A(\vec{H}) = f_o \left\{ \mathcal{L}(\vec{H}) \quad (1+e^{\pi i(h+k+l)}) + \right.$$

$$\frac{A_D}{2} \left[\mathcal{L}(\vec{H} - \frac{\vec{q}_D}{2\pi}) \; e^{i\delta} \; (1+e^{i(q_{x/2}+\delta')} \; e^{\pi i(h+k+l)}) + \right.$$

$$\left. \left. \mathcal{L}(\vec{H} + \frac{\vec{q}_D}{2\pi}) \; e^{-i\delta} \; (1+e^{-i(q_{x/2}+\delta')} \; e^{\pi i(h+k+l)}) \right] \right\} \quad \text{(A 2.3)}$$

Dem harmonischen Ansatz für die Dichtewelle entsprechend, wird jeder Hauptreflex $\vec{H}$ von einem einzigen Paar Satelliten an den Stellen $\vec{H} \pm \frac{\vec{q}_D}{2\pi}$ begleitet.

Für die Intensität der Hauptreflexe folgt

$$I(\vec{H}) \sim |A(\vec{H})|^2 = N^2 f_o^2 (2 + 2\,\mathrm{sgn}\tau)$$

$$= N^2 f_o^2 \begin{cases} 4 \text{ für } h+k+l = \text{gerade} \\ 0 \text{ für } h+k+l = \text{ungerade} \end{cases} \quad \text{(A 2.4)}$$

Entsprechend erhält man die Intensität der Satelliten

$$I\left(\vec{H} \pm \frac{\vec{q}_D}{2\pi}\right) \sim \left| A(\vec{H} \pm \frac{\vec{q}_D}{2\pi}) \right|^2$$

$$= N^2 f_o^2 \cdot \frac{A_D^2}{4} \quad (2+2\,\mathrm{sgn}\tau \cos(\frac{q_D}{2} + \delta')) \quad \text{(A 2.5)}$$

A 2.1.1 Theorie einer phasenmodulierten Ladungsdichtewelle

Das Modell der Ladungsdichtewelle kann durch das Einführen einer modulierten Phase erweitert werden. Dazu wird die Phasenverschiebung δ der Dichtewelle gegenüber dem Grundgitter beschrieben durch

$$\delta\ (\underset{\sim}{r}) \;=\; \hat{\delta}\ \cos\ (\hat{\underset{\sim}{q}}\ \cdot(\underset{\sim}{r}_{uvw} + \underset{\sim}{r}_j)\ +\ \alpha) \qquad \text{(A 2.6)}$$

wobei $\hat{\underset{\sim}{q}}$ der Wellenvektor und $\hat{\delta}$ die Amplitude der Phasenmodulation ist.

Mit der so modifizierten Phase lautet das modulierte Streuvermögen

$$f \;=\; f_o \left[\ 1+ A_D\ \cos\left\{\ \underset{\sim}{q}_D\ \cdot(\underset{\sim}{r}_{uvw}+\ \underset{\sim}{r}_j)\right.\right.$$
$$\left.\left. +\ \hat{\delta}\cos\ (\hat{\underset{\sim}{q}}\ \cdot(\underset{\sim}{r}_{uvw}\ +\ \underset{\sim}{r}_j)\ +\alpha)\right\}\ \right] \qquad \text{(A 2.7)}$$

Damit ergibt die Gesamtamplitude der gestreuten Röntgenstrahlung

$$A(\tilde{\underset{\sim}{H}}) \;=\; f_o \sum_j \sum_{uvw}\ e^{2\pi i\ \tilde{\underset{\sim}{H}}\cdot\underset{\sim}{r}_{uvw}} \left[\ 1 + \right.$$
$$\frac{A_D}{2}\left\{\ e^{i\left[\ \underset{\sim}{q}_D\cdot(\underset{\sim}{r}_{uvw}+\underset{\sim}{r}_j)+\ \frac{\hat{\delta}}{2}\left(\ e^{i\left(\hat{\underset{\sim}{q}}\cdot(\underset{\sim}{r}_{uvw}+\underset{\sim}{r}_j)+\alpha\right)}\ +\ e^{-i\left(\hat{\underset{\sim}{q}}\cdot(\underset{\sim}{r}_{uvw}+\underset{\sim}{r}_j)+\alpha\right)}\right)\right]}\right. \;+$$
$$\left.\left. -i\left[\ \underset{\sim}{q}_D\cdot(\underset{\sim}{r}_{uvw}+\underset{\sim}{r}_j)+\ \frac{\hat{\delta}}{2}\left(\ e^{i\left(\hat{\underset{\sim}{q}}\cdot(\underset{\sim}{r}_{uvw}+\underset{\sim}{r}_j)+\alpha\right)}\ +\ e^{-i\left(\hat{\underset{\sim}{q}}\cdot(\underset{\sim}{r}_{uvw}+\underset{\sim}{r}_j)+\alpha\right)}\right)\right]}\right\}\right]\cdot$$
$$\cdot\ e^{2\pi i\ \tilde{\underset{\sim}{H}}\cdot\underset{\sim}{r}_j} \qquad \text{(A 2.8)}$$

Jede Exponentialfunktion der Form $e^{1/2\ z(t-t^{-1})}$ läßt sich nach /63/ durch eine unendliche Reihe von Besselfunktionen 1. Art darstellen:

$$e^{1/2\ z(t-t^{-1})} = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} t^n\ J_n[z] \quad \text{mit } t \neq 0 \tag{A 2.9}$$

Damit folgt:

$$R(\tilde{\underline{H}}) = f_0 \sum_j \sum_{u,v,w} \left[e^{2\pi i\, \tilde{\underline{H}}\cdot \underline{r}_{uvw}} + \frac{A_D}{2} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \left\{ e^{2\pi i \left(\tilde{\underline{H}} + \frac{\underline{q}_D}{2\pi} + n\frac{\hat{\underline{q}}}{2\pi}\right)\cdot \underline{r}_{uvw}} e^{i\underline{q}_D\cdot \underline{r}_j} + e^{2\pi i \left(\tilde{\underline{H}} - \frac{\underline{q}_D}{2\pi} + n\frac{\hat{\underline{q}}}{2\pi}\right)\cdot \underline{r}_{uvw}} e^{-i\underline{q}_D\cdot \underline{r}_j} \right\} e^{in(\hat{\underline{q}}\cdot \underline{r}_j + \alpha)}\ J_n[\hat{\delta}] \right] e^{2\pi i\, \tilde{\underline{H}}\cdot \underline{r}_j} \tag{A 2.10}$$

Die Laue-Näherung ergibt dann die Amplitude zu

$$R(\underline{H}) = f_0 \sum_j \left[\mathcal{L}(\underline{H}) + \frac{A_D}{2} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \left\{ \mathcal{L}\left(\underline{H} - \frac{\underline{q}_D}{2\pi} - n\frac{\hat{\underline{q}}}{2\pi}\right) e^{i\underline{q}_D\cdot \underline{r}_j} + \mathcal{L}\left(\underline{H} + \frac{\underline{q}_D}{2\pi} - n\frac{\hat{\underline{q}}}{2\pi}\right) e^{-i\underline{q}_D\cdot \underline{r}_j} \right\} e^{in(\hat{\underline{q}}\cdot \underline{r}_j + \alpha)}\ J_n[\hat{\delta}] \right] e^{2\pi i\, \underline{H}\cdot \underline{r}_j} \tag{A 2.11}$$

Durch Auswerten der Summe über n und geeignetes Zusammenfassen lautet die Amplitude schließlich:

$$R(\underline{H}) = f_0 \sum_j \left[\mathcal{L}(\underline{H}) + \frac{A_D}{2} \left\{ \left(\mathcal{L}\left(\underline{H} - \frac{\underline{q}_D}{2\pi}\right) e^{i\underline{q}_D\cdot \underline{r}_j} + \mathcal{L}\left(\underline{H} + \frac{\underline{q}_D}{2\pi}\right) e^{-i\underline{q}_D\cdot \underline{r}_j} \right) J_0[\hat{\delta}] + \sum_{n=1}^{\infty} \left(\mathcal{L}\left(\underline{H} - \frac{\underline{q}_D}{2\pi} \mp n\frac{\hat{\underline{q}}}{2\pi}\right) e^{i\underline{q}_D\cdot \underline{r}_j} + \mathcal{L}\left(\underline{H} + \frac{\underline{q}_D}{2\pi} \mp n\frac{\hat{\underline{q}}}{2\pi}\right) e^{-i\underline{q}_D\cdot \underline{r}_j} \right) e^{\pm in(\hat{\underline{q}}\cdot \underline{r}_j + \alpha)} \cdot J_{\pm n}[\hat{\delta}] \right\} \right] e^{2\pi i\, \underline{H}\cdot \underline{r}_j} \tag{A 2.12}$$

Mit der Summe über j werden wieder die entsprechenden Punktlagen der nichtprimitiven Elementarzelle berücksichtigt.

Diese Amplitude beschreibt eine Intensitätsverteilung, in der jeder Hauptreflex $\vec{H}$ von zwei "Ladungsdichtewellen"-Satelliten an den Stellen $\vec{H} \pm \frac{\vec{q}_D}{2\pi}$ begleitet wird, die ihrerseits von unendlich vielen "Phasen"-Satelliten an den Stellen $\vec{H} + \frac{\vec{q}_D}{2\pi} \pm n \frac{\hat{\vec{q}}}{2\pi}$ und $\vec{H} - \frac{\vec{q}_D}{2\pi} \pm n \frac{\hat{\vec{q}}}{2\pi}$ begleitet werden.

Somit zeigt das Übergitter einer phasenmodulierten Ladungsdichtewelle bei beliebiger Orientierung des Wellenvektors $\hat{\vec{q}}$ der Phasenmodulation in Bezug auf den Wellenvektor $\vec{q}_D$ der Ladungsdichtewelle die in Abb. A 2 dargestellte Intensitätsverteilung.

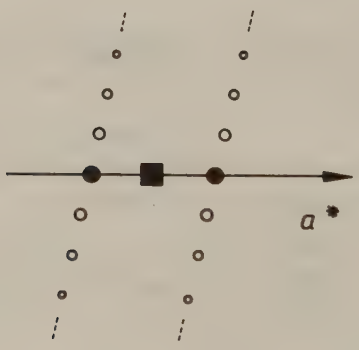


Abb. A 2: Schematische Darstellung der Intensitätsverteilung für das Modell einer phasenmodulierten Ladungsdichtewelle (■ = Hauptreflex, ● = "Ladungsdichtewellen"-Satellit, ○ = "Phasen"-Satelliten abgestufter Intensität)

Entspricht die Wellenlänge der Phasenmodulation der Wellenlänge der Ladungsdichtewelle und sind die beiden Wellenvektoren parallel einer der Hauptachsen, fällt ein "Phasen"-Satellit 1. Ordnung (n=1) mit dem Hauptreflex zusammen.

Durch entsprechendes Zusammenfassen folgt für die Hauptreflexe $A(\vec{H}) = N f_o (1 + \exp(\pi i(h+k+l)))$ und man erhält in Übereinstimmung mit dem Modell der reinen Ladungsdichtewelle die Hauptreflexintensität zu

$$I(\vec{H}) \sim N^2 f_o^2 (2 + 2\,\mathrm{sgn}\tau) \qquad \text{(A 2.13)}$$

Die Modulation der Phase bewirkt keine Änderung der Hauptreflexintensität, die Innenzentrierung bleibt im Modell der phasenmodulierten Ladungsdichtewelle erhalten.

Verallgemeinert kann die Amplitude für die Satelliten beschrieben werden durch

$$A\left(\vec{H} \mp \frac{\vec{q}_D}{2\pi} \mp n\,\frac{\hat{\vec{q}}}{2\pi}\right) = f_o \cdot \frac{A_D}{2} \sum_j \sum_{n=0}^{\infty} \mathcal{L}\left(\vec{H} \mp \frac{\vec{q}_D}{2\pi} \mp n\,\frac{\vec{q}}{2\pi}\right) e^{\pm i\left[(\vec{q}_D + n\hat{\vec{q}})\cdot \vec{r}_j + n\alpha\right]} \cdot J_{\pm n}[\hat{\delta}]\; e^{2\pi i \vec{H}\cdot\vec{r}_j} \qquad \text{(A 2.14)}$$

mit n= O für die "Ladungsdichtewellen"-Satelliten und $n \geq 1$ für die "Phasen"-Satelliten.

Die Intensität der "Ladungsdichtewellen"-Satelliten lautet dann:

$$I\left(\vec{H} \mp \frac{\vec{q}_D}{2\pi}\right) \sim \left| A\left(\vec{H} \mp \frac{\vec{q}_D}{2\pi}\right)\right|^2 =$$

$$N^2 f_o^2 \frac{A_D^2}{4} J_0^2[\hat{\delta}] \left(2 + 2\,\mathrm{sgn}\,J \cos\left(\frac{q_D}{2} + \alpha'\right)\right) \qquad \text{(A 2.15)}$$

Für kleine Amplituden $\hat{\delta}$ der Phasenmodulation ist diese Intensität mit der für die reine Ladungsdichtewelle abgeleiteten Satellitenintensität (vgl. A 2.5) identisch.

Mit $n \geq 1$ erhält man die Intensität des "Phasen"-Satelliten n-ter Ordnung:

$$I(\underline{H} \mp \frac{q_D}{2\pi} \mp \frac{\hat{q}}{2\pi}) \sim \left| A(\underline{H} \mp \frac{q_D}{2\pi} \mp n\frac{\hat{q}}{2\pi}) \right|^2$$

$$= N^2 f_0^2 \frac{A_D^2}{4} J_n^2 [\hat{\delta}] \left(2 + 2\,\mathrm{sgn}\,\bar{J} \cos(\alpha' \pm \frac{q_D}{2} \pm n\frac{\hat{q}}{2})\right) \quad \text{(A 2.16)}$$

A 2.2 Theorie der Modulation der Ortsparameter (Verzerrungswelle)

In dem Modell der Modulation der Ortsparameter geht der Vektor zum Eckpunkt der Elementarzelle $\underset{\rightarrow}{r}_{uvw}$ durch Einführen eines Modulationsvektors $\underset{\rightarrow}{s}(u, v, w)$ über in den Vektor $\underset{\rightarrow}{r}'_{uvw}$ des modulierten Gitters /8,9/ :

$$\underset{\rightarrow}{r}'_{uvw} = \underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{s}(u,v,w)$$

der im Fall einer harmonischen Verzerrungswelle durch

$$\underset{\rightarrow}{r}'_{uvw} = \underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{A}_v \sin(\underset{\rightarrow}{q}_v \cdot (\underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{r}_j) + \varphi) \quad \text{(A 2.17)}$$

gegeben ist. $\underset{\rightarrow}{A}_v = A_{1v}\underset{\rightarrow}{a} + A_{2v}\underset{\rightarrow}{b} + A_{3v}\underset{\rightarrow}{c}$ und $\underset{\rightarrow}{q}_v = q_{1v}\underset{\rightarrow}{a}^* + q_{2v}\underset{\rightarrow}{b}^* + q_{3v}\underset{\rightarrow}{c}^*$ beschreiben die Amplitude bzw. den Wellenvektor der Verzerrungswelle, φ berücksichtigt die Phasenverschiebung gegenüber dem unmodulierten Gitter.

Die Gesamtamplitude der an der durch die Verzerrungswelle modulierten Struktur gestreuten Röntgenstrahlen lautet dann (vgl. A 1.6)) :

$$A(\underset{\sim}{\tilde{H}}) = \sum_{u,v,w} e^{2\pi i \underset{\sim}{\tilde{H}} \cdot \underset{\rightarrow}{r}'_{uvw}} \sum_{s} f_s \sum_{j} e^{2\pi i \underset{\sim}{\tilde{H}} \cdot \underset{\rightarrow}{r}_j}$$

Für eine monoatomare Substanz ergibt sich damit:

$$A(\tilde{\underline{H}}) = f_0 \sum_{u,v,w} \sum_j e^{2\pi i \tilde{\underline{H}} \cdot \left[\underline{r}_{uvw} + \underline{A}_v \sin\left(\underline{q}_v \cdot (\underline{r}_{uvw} + \underline{r}_j) + \varphi \right) \right]} e^{2\pi i \tilde{\underline{H}} \cdot \underline{r}_j} \qquad \text{(A 2.18)}$$

Aus der Exponentialdarstellung der sin-Funktion folgt mit (A 2.9) :

$$A(\tilde{\underline{H}}) = f_0 \sum_{uvw} \sum_j e^{2\pi i \tilde{\underline{H}} \cdot \underline{r}_{uvw}} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} e^{in(\underline{q}_v \cdot (\underline{r}_{uvw} + \underline{r}_j) + \varphi)} \cdot$$

$$\cdot J_n \left[2\pi \tilde{\underline{H}} \cdot \underline{A}_v \right] e^{2\pi i \tilde{\underline{H}} \cdot \underline{r}_j} \qquad \text{(A 2.19)}$$

Durch Auswerten der Summe über u,v,w ergibt sich

$$A(\tilde{\underline{H}}) = f_0 \sum_j \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \mathcal{L}(\tilde{\underline{H}} + n \frac{\underline{q}_v}{2\pi}) e^{in(\underline{q}_v \cdot \underline{r}_j + \varphi)} J_n [2\pi \tilde{\underline{H}} \cdot \underline{A}_v] e^{2\pi i \underline{H} \cdot \underline{r}_j} \qquad \text{(A 2.20)}$$

Die Summe über n kann in drei Terme zerlegt werden. Bei Verwendung der Approximation für die Laue-Funktion erhält man durch den Übergang $\tilde{\underline{H}} = (\tilde{h}, \tilde{k}, \tilde{l})$ kontinuierlich nach $\underline{H} \pm n \frac{\underline{q}_v}{2\pi}$ mit h, k, l = 0, ±1, ±2, ... :

$$A(\underline{H}) = f_0 \sum_j \left\{ \mathcal{L}(\underline{H}) J_0 [2\pi \underline{H} \cdot \underline{A}_v] + \sum_{n=1}^{\infty} \left(\mathcal{L}(\underline{H} + n \frac{\underline{q}_v}{2\pi}) e^{-in(\underline{q}_v \cdot \underline{r}_j + \varphi)} \cdot \right. \right.$$

$$\left. \left. \cdot J_n [2\pi (\underline{H} + n \frac{\underline{q}_v}{2\pi}) \cdot \underline{A}_v] + \mathcal{L}(\underline{H} - n \frac{\underline{q}_v}{2\pi}) e^{in(\underline{q}_v \cdot \underline{r}_j + \varphi)} J_n [2\pi (\underline{H} - n \frac{\underline{q}_v}{2\pi}) \cdot \underline{A}_v] \right) \right\} \cdot$$

$$\cdot e^{2\pi i \underline{H} \cdot \underline{r}_j} \qquad \text{(A 2.21)}$$

d.h. jeder Hauptreflex $\underline{H}$ wird von u n e n d l i c h vielen Satelliten an den Stellen $\underline{H} \pm n \frac{\underline{q}_v}{2\pi}$ begleitet.

Dieser Beschreibung entsprechend kann die Amplitude wie folgt zusammengefaßt werden:

$$A\left(\vec{H} \mp n\frac{\vec{q}_v}{2\pi}\right) = N f_o \sum_j e^{\pm in(\vec{q}_v\cdot(\vec{r}_{uvw}+\vec{r}_j)+\varphi)} \cdot J_n\left[2\pi\left(\vec{H}\mp n\frac{\vec{q}_v}{2\pi}\right)\cdot\vec{A}_v\right]\cdot e^{2\pi i\vec{H}\cdot\vec{r}_j} \quad (A\ 2.22)$$

In dieser Darstellung ergibt sich die Amplitude eines Hauptreflexes für n=0, die der Satelliten 1. Ordnung für n=1, u.s.w.

Für das kubisch innenzentrierte Gitter von Chrom mit den Punktlagen 0, 0, 0 und 1/2, 1/2, 1/2 lautet dann die Amplitude der gestreuten Röntgenstrahlen:

$$A\left(\vec{H}\mp n\frac{\vec{q}_v}{2\pi}\right) = N f_o \; J_{\pm n}\left[2\pi\left(\vec{H}\mp n\frac{\vec{q}_v}{2\pi}\right)\cdot\vec{A}_v\right] e^{\pm in\varphi} \cdot \left(1+e^{\pm in\left(\frac{q_v}{2}+\varphi'\right)}\cdot e^{\pi i(h+k+l)}\right) \quad (A\ 2.23)$$

Die Phase φ' beschreibt die Phasenverschiebung der Verzerrungswelle für das Mittenatom in Bezug auf das Eckatom. Für die Intensität der Hauptreflexe (n=0) folgt:

$$I(\vec{H}) \sim |A(\vec{H})|^2 = N^2 f_o^2 J_o^2\left[2\pi\vec{H}\cdot\vec{A}_v\right]\left\{2+2\,\mathrm{sgn}\tau\right\} \quad (A\ 2.24)$$

Mit $J_{-n}[z] = (-1)^n J_n(z)$ /63/ ergibt sich die Intensität des Satelliten n-ter Ordnung zu

$$I\left(\vec{H}\mp m\frac{\vec{q}_v}{2\pi}\right) \sim N^2 f_o^2 J_n^2\left[2\pi\left(\vec{H}\mp n\frac{\vec{q}_v}{2\pi}\right)\cdot\vec{A}_v\right]\left\{2+2\,\mathrm{sgn}\tau\cdot\cos n\left(\frac{q_v}{2}+\varphi'\right)\right\} \quad (A\ 2.25)$$

mit $\mathrm{sgn}\tau = +1$ für h+k+l = gerade
und $\mathrm{sgn}\tau = -1$ für h+k+l = ungerade

A 2.2.1 Beispiel einer harmonischen transversalen Verzerrungswelle in Richtung $\underset{\rightarrow}{a}$.

In diesem Spezialfall läßt sich der Vektor zum Eckpunkt der Elementarzelle beschreiben durch

$$\underset{\rightarrow}{r}'_{uvw} = \underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + A_{2v}\underset{\rightarrow}{b} \sin\left(q_{1v}(u + x_j) + \varphi\right) \qquad \text{(A 2.26)}$$

Aus (A 2.24) erhält man die Intensität der Hauptreflexe (n=0) zu:

$$I\left(\underset{\rightarrow}{H}\right) \sim N^2 f_o^{\,2} J_o^{\,2}\left[2\pi k A_{2v}\right]\left\{2 + 2\,\mathrm{sgn}\tau\right\} \qquad \text{(A 2.27)}$$

und für die Satellitenintensität (A 2.25) gilt:

$$I\left(h \mp n\frac{q_{1v}}{2\pi}, k, l\right) \sim N^2 f_o^{\,2} J_n^{\,2}\left[2\pi k A_{2v}\right] \cdot$$

$$\left\{2 + 2\,\mathrm{sgn}\tau \cos n\left(\frac{q_{1v}}{2} + \varphi'\right)\right\} \qquad \text{(A 2.28)}$$

A 2.2.2 Beispiel einer harmonischen longitudinalen Verzerrungswelle in Richtung $\underset{\rightarrow}{a}$.

In diesem Fall lautet der Vektor zum Eckpunkt der Elementarzelle

$$\underset{\rightarrow}{r}'_{uvw} = \underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + A_{1v}\underset{\rightarrow}{a} \sin\left(q_{1v}\,(u + x_j) + \varphi\right) \qquad \text{(A 2.29)}$$

Die Intensität der Hauptreflexe (n=0) läßt sich entsprechend beschreiben durch

$$I\left(\underset{\rightarrow}{H}\right) \sim N^2 f_o^{\,2} J_o^2\left[2\pi h A_{1v}\right]\left\{2 + 2\,\mathrm{sgn}\tau\right\} \qquad \text{(A 2.30)}$$

und für die Intensität der Satelliten folgt aus (A 2.25) :

$$I\left(h\mp n\frac{q_{1v}}{2\pi}, k, l\right) \sim N^2 f_o^2 J_n^2 \left[2\pi\left(h\mp n\frac{q_{1v}}{2\pi}\right)A_{1v}\right] \cdot$$

$$\left\{2 + 2\,\mathrm{sgn}\tau \cos n\left(\frac{q_{1v}}{2} + \varphi'\right)\right\} \qquad \text{(A 2.31)}$$

A 2.2.3 Theorie einer phasenmodulierten harmonischen Verzerrungswelle

Ist die Phasenverschiebung zwischen dem Grundgitter und dem durch die Verzerrungswelle modulierten Gitter eine periodische Funktion des Ortes

$$\varphi\left(\underset{\rightarrow}{r}'_{uvw}\right) = \hat{\varphi}\sin\left(\hat{\underset{\rightarrow}{q}}\cdot\left(\underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{r}_j\right) + \alpha\right), \qquad \text{(A 2.32)}$$

wobei $\hat{\underset{\rightarrow}{q}}$ der Wellenvektor und $\hat{\varphi}$ die Amplitude der Phasenmodulation ist, gilt für den Vektor $\underset{\rightarrow}{r}'_{uvw}$ des modulierten Gitters:

$$\underset{\rightarrow}{r}'_{uvw} = \underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{A}_v \sin\left(\left(\underset{\rightarrow}{q}_v\cdot\left(\underset{\rightarrow}{r}_{uvw}+\underset{\rightarrow}{r}_j\right) + \hat{\varphi}\sin\left(\hat{\underset{\rightarrow}{q}}\cdot\left(\underset{\rightarrow}{r}_{uvw}+\underset{\rightarrow}{r}_j\right)+\alpha\right)\right)\right) \qquad \text{(A 2.33)}$$

Für eine monoatomare Substanz lautet dann die komplexe Gesamtamplitude der gestreuten Röntgenstrahlung:

$$A(\tilde{\underset{\rightarrow}{H}}) = f_o \sum_j \sum_{u,v,w} \exp\left\{2\pi i\,\tilde{\underset{\rightarrow}{H}}\cdot\left[\underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{A}_v \sum_{m=-\infty}^{+\infty} J_m[\hat{\varphi}]\cdot\right.\right.$$

$$\left.\left.\cdot\frac{1}{2}i\left[e^{i\left((q_v+m\hat{q})\cdot(r_{uvw}+r_j)+m\alpha\right)} - e^{-i\left((q_v+m\hat{q})\cdot(r_{uvw}+r_j)+m\alpha\right)}\right]\right]\cdot$$

$$\cdot\, e^{2\pi i\,\tilde{\underset{\rightarrow}{H}}\cdot\underset{\rightarrow}{r}_j} \qquad \text{(A 2.34)}$$

Die Zerlegung des Phasenterms führt zu einem unendlichen Produkt:

$$A(\tilde{\underline{H}}) = f_0 \sum_j \sum_{\mu,\nu,\omega} \prod_{m=-\infty}^{+\infty} \sum_{n_m=-\infty}^{+\infty} e^{2\pi i\left(\tilde{\underline{H}} + n_m\left(\frac{\underline{q}_\nu}{2\pi} + m\frac{\hat{\underline{q}}}{2\pi}\right)\right)\cdot \underline{r}_{\mu\nu\omega}} \cdot$$

$$\cdot J_{n_m}\left[2\pi \tilde{\underline{H}}\cdot \underline{A}_\nu\right] J_m[\hat{\varphi}]\, e^{i n_m\left[(\underline{q}_\nu + m\hat{\underline{q}})\cdot \underline{r}_j + m\alpha\right]}\, e^{2\pi i \tilde{\underline{H}}\cdot \underline{r}_j} \qquad \text{(A 2.35)}$$

Nimmt man als Näherung jeweils nur einen Faktor $J_{n_m}[2\pi\tilde{\underline{H}}\cdot\underline{A}_\nu\, J_m[\hat{\rho}]]$ $n,m \neq 0$ mit, ergibt sich die Amplitude im Rahmen der Laue-Näherung (vgl. Seite 121) zu:

$$A\left(\underline{H} \mp n\left(\frac{\underline{q}_\nu}{2\pi} \mp m\frac{\hat{\underline{q}}}{2\pi}\right)\right) = N f_0 \sum_j J_{\pm n}\left[2\pi\left(\underline{H} \mp n\left(\frac{\underline{q}_\nu}{2\pi} \mp m\frac{\hat{\underline{q}}}{2\pi}\right)\right)\cdot \underline{A}_\nu\, J_m[\hat{\varphi}]\right] \cdot$$

$$e^{\pm i n\left[(\underline{q}_\nu + m\hat{\underline{q}})\cdot \underline{r}_j + m\alpha\right]}\, e^{2\pi i \underline{H}\cdot \underline{r}_j} \qquad \text{(A 2.36)}$$

Jeder Hauptreflex wird von unendlich vielen Paaren "Verzerrungswellen"-Satelliten begleitet, die ihrerseits von unendlich vielen Paaren "Phasen"-Satelliten begleitet werden.
Abb. A3 zeigt im Rahmen dieser Näherung schematisch die Intensitätsverteilung im Beugungsbild für das Modell einer phasenmodulierten harmonischen Verzerrungswelle.

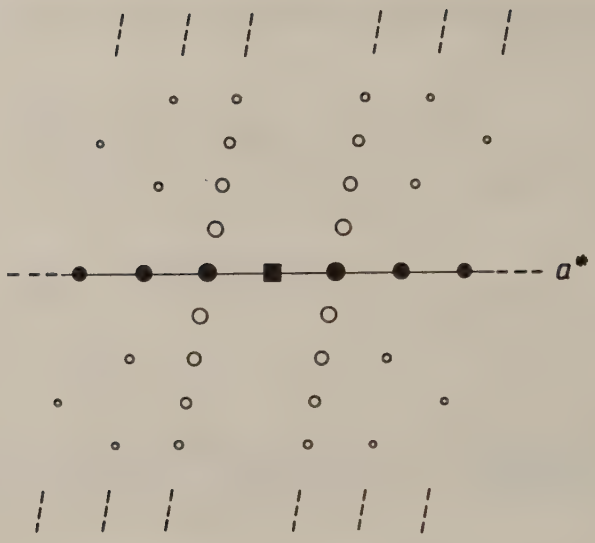


Abb. A3: Schematische Darstellung der Intensitätsverteilung für das Modell einer phasenmodulierten harmonischen Verzerrungswelle (Näherung) (■ = Hauptreflex, ● = "Verzerrungswelle" -Satelliten abgestufter Intensität, ○ = "Phasen"-Satelliten abgestufter Intensität)

Dem Modell der reinen Verzerrungswelle (vgl. (A 2.24)) entsprechend erhält man für n=m=0 die Intensität der Hauptreflexe zu

$$I(\vec{H}) \sim |A(\vec{H})|^2 \sim J_0^2[2\pi\vec{H}\cdot\vec{A}_V]\{2 + 2\mathrm{sgn}\tau\} \qquad \text{(A 2.37)}$$

und die Intensität der "Verzerrungswelle"-Satelliten für $n \geq 1$ und m=0 an den Stellen $\vec{H} \mp n\frac{q_V}{2\pi}$:

$$I(\vec{H} \mp n\tfrac{q_V}{2\pi}) \sim |A(\vec{H} \mp n\tfrac{q_V}{2\pi})|^2 \sim$$

$$J_n^2[2\pi(\vec{H} \mp n\tfrac{q_V}{2\pi})\cdot\vec{A}_V]\{2 + 2\mathrm{sgn}\tau\cos n\tfrac{q_V}{2}\} \qquad \text{(A 2.38)}$$

Für m≠0 ergibt sich die Intensität des "Phasen"-Satelliten ± m-ter Ordnung, der den "Verzerrungswellen"-Satelliten ± n-ter Ordnung begleitet,zu:

$$I\left(\underline{H} \mp n\left(\frac{q_v}{2\pi} \mp m\frac{\hat{q}}{2\pi}\right)\right) \sim \left|A\left(\underline{H} \mp n\left(\frac{q_v}{2\pi} \mp m\frac{\hat{q}}{2\pi}\right)\right)\right|^2 \sim$$

$$J_n^2\left[2\pi\left(\underline{H} \mp n\left(\frac{q_v}{2\pi} \mp m\frac{\hat{q}}{2\pi}\right)\right)\cdot\underline{A}_v\right] J_m[\hat{\varphi}]\left\{2 + 2\,\mathrm{sgn}\,5 \cdot\right.$$

$$\left.\cdot\cos m\left(\frac{q_v}{2} + m\frac{\hat{q}}{2} + m\alpha'\right)\right\} \qquad \text{(A 2.39)}$$

Die Intensitäten der zu einer bestimmten "Verzerrungswellen"-Satelliten Ordnung n gehörenden "Phasen"-Satelliten der Ordnungen m = ±1, ±2, ±3, ... ändern sich entsprechend dem Wert der das Argument der n-ten Besselfunktion bestimmenden Besselfunktion m-ter Ordnung.

A 3 Theorie eines Modells der Kombination einer harmonischen Verzerrungswelle und einer harmonischen Ladungsdichtewelle.

Wird die Verzerrungswelle wieder durch die Modulation des Ortsvektors (A 2.17) und die Ladungsdichtewelle durch eine Modulation der Streukraftdichte (A 2.1.) beschrieben mit

$$\underset{\rightarrow}{r}'_{uvw} = \underset{\rightarrow}{r}_{uvw} + \underset{\rightarrow}{A}_v \sin\left(\underset{\rightarrow}{q}_v\cdot(\underset{\rightarrow}{r}_{uvw}+\underset{\rightarrow}{r}_j) + \varphi\right) \quad \text{und}$$

$$f' = f_o(1+ A_D \cos(\underset{\rightarrow}{q}_D\cdot(\underset{\rightarrow}{r}_{uvw}+\underset{\rightarrow}{r}_j)+\delta))$$

folgt für die komplexe Gesamtamplitude der gestreuten Röntgenstrahlen mit (A 1.6) für eine monoatomare Substanz:

$$A(\tilde{\underline{H}}) = \sum_j \sum_{\mu,\nu,\omega} \exp\Big(2\pi i \, \tilde{\underline{H}} \cdot \{ \underline{r}_{uvw} + \underline{A}_\nu \sin(\underline{q}_\nu \cdot (\underline{r}_{uvw} + \underline{r}_j) + \varphi) \} \Big) \cdot$$

$$\cdot f_0 \left(1 + A_D \cos(\underline{q}_D \cdot (\underline{r}_{uvw} + \underline{r}_j) + \delta) \right) \exp(2\pi i \, \tilde{\underline{H}} \cdot \underline{r}_j) \qquad \text{(A3.1)}$$

Die Exponentialschreibweise der beiden trigonometrischen Funktionen führt mit der Beziehung (A 2.9) durch Auswerten der Summe über u,v,w zu:

$$A(\tilde{\underline{H}}) = f_0 \sum_j \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n [2\pi \tilde{\underline{H}} \cdot \underline{A}_\nu] \, e^{in(\underline{q}_\nu \cdot \underline{r}_j + \varphi)} \left\{ \mathcal{L}(\tilde{\underline{H}} + n \frac{\underline{q}_\nu}{2\pi}) + \right.$$

$$\left. \frac{A_D}{2} \left(\mathcal{L}(\tilde{\underline{H}} + n \frac{\underline{q}_\nu}{2\pi} + \frac{\underline{q}_D}{2\pi}) e^{i(\underline{q}_D \cdot \underline{r}_j + \delta)} + \mathcal{L}(\tilde{\underline{H}} + n \frac{\underline{q}_\nu}{2\pi} - \frac{\underline{q}_D}{2\pi}) e^{-i(\underline{q}_D \cdot \underline{r}_j + \delta)} \right) \right\} \cdot$$

$$\cdot \, e^{2\pi i \tilde{\underline{H}} \cdot \underline{r}_j} \qquad \text{(A3.2)}$$

Nach dem Zerlegen der Summe über n in drei Terme erhält man im Rahmen der Laue-Näherung beim Übergang $\tilde{\underline{H}} = (\tilde{h}, \tilde{k}, \tilde{l})$ kontinuierlich nach $\underline{H} = (h, k, l)$ mit h, k, l = 0, ±1, ±2,... durch entsprechendes Zusammenfassen der Summanden die Gesamtamplitude in verallgemeinerter Schreibweise zu:

$$A(\underline{H} \mp n \frac{\underline{q}_\nu}{2\pi} \mp \frac{\underline{q}_D}{2\pi}) = N f_0 \sum_j e^{\pm in(\underline{q}_\nu \cdot \underline{r}_j + \varphi)} \left\{ J_{\pm n} [2\pi (\underline{H} \mp n \frac{\underline{q}_\nu}{2\pi}) \cdot \underline{A}_\nu] + \right.$$

$$\left. \frac{A_D}{2} J_{\pm n} [2\pi (\underline{H} \mp n \frac{\underline{q}_\nu}{2\pi} \mp \frac{\underline{q}_D}{2\pi}) \cdot \underline{A}_\nu] \, e^{\pm i(\underline{q}_D \cdot \underline{r}_j + \delta)} \right\} e^{2\pi i \underline{H} \cdot \underline{r}_j}$$

$$\text{(A3.3)}$$

Man erhält demnach Beiträge zur Gesamtamplitude an der Stelle $\underline{H}$, an den Stellen $\underline{H} \mp n \frac{\underline{q}_\nu}{2\pi}$ als Folge der Störung des Gitters durch die Verzerrungswelle, an den Stellen $\underline{H} \mp \frac{\underline{q}_D}{2\pi}$ als Folge der Störung der Elektronendichte durch

die Ladungsdichtewelle und an den Stellen $\underset{\rightarrow}{H} \mp n\frac{q_V}{2\pi} \mp \frac{q_D}{2\pi}$.

A 3.1 Gleiche Periode der beiden Modulationswellen

Unter der Voraussetzung, daß die Verzerrungswelle und die Ladungsdichtewelle die gleiche Modulationswellenlänge $q_V = q_D = q$ haben, vereinfacht sich die Amplitude zu:

$$A(\underline{H} \mp n\frac{q}{2\pi}) = f_o N \sum_j e^{\pm in(\underline{q}\cdot\underline{r}_j + \varphi)} \left\{ J_{\pm n}\left[2\pi(\underline{H} \mp n\frac{q}{2\pi})\cdot\underline{A}_V\right] + \frac{A_D}{2}\left[J_{\pm n-1}\left[2\pi(\underline{H} \mp n\frac{q}{2\pi})\cdot\underline{A}_V\right] e^{+i(\delta-\varphi')} + J_{\pm n+1}\left[2\pi(\underline{H} \mp n\frac{q}{2\pi})\cdot\underline{A}_V\right] e^{-i(\delta-\varphi')}\right]\right\} e^{2\pi i \underline{H}\cdot\underline{r}_j}$$

(A3.4)

Für eine kubisch innenzentrierte Struktur folgt unter Berücksichtigung der Phasenverschiebung φ' und δ' der Verzerrungs- und Dichtewelle zwischen Eck- und Mittenatom und mit der Abkürzung $z = 2\pi(\underset{\rightarrow}{H} \pm n\frac{q}{2\pi})\cdot \underline{A}_V$ für das Argument der Besselfunktionen

$$A(\underline{H} \mp n\frac{q}{2n}) = f_o N \cdot \left\{ e^{\pm in\varphi} \left(J_{\pm n}[z] + \frac{A_D}{2}\left[J_{\pm n-1}[z] e^{i(\delta-\varphi')} + J_{\pm n+1}[z] e^{-i(\delta-\varphi')}\right]\right) + e^{\pm in\left(\frac{q}{2}+\varphi+\varphi'\right)} \left(J_{\pm n}[z] + \frac{A_D}{2}\left[J_{\pm n-1}[z] e^{i(\delta+\delta'-\varphi-\varphi')} + J_{\pm n+1}[z] e^{-i(\delta+\delta'-\varphi-\varphi')}\right]\right) e^{\pi i(h+k+l)} \right\}$$

(A3.5)

Zur Berechnung der Intensitäten werden folgende Schreibweisen eingeführt:

- für die Phasen: $\alpha = \delta - \varphi$
  $\beta = \delta + \delta' - \varphi - \varphi'$
  $\gamma = \frac{q}{2} + \varphi + \varphi'$

- für die Argumente der Besselfunktionen: $z_0 = 2\pi \underset{\rightarrow}{H} \cdot \underset{\rightarrow}{A}_V$

$$z_1 = 2\pi \left(\underset{\rightarrow}{H} + \frac{\underset{\rightarrow}{q}}{2\pi}\right) \cdot \underset{\rightarrow}{A}_V$$

Damit gilt für die Intensität der Hauptreflexe (n=0) die Beziehung

$$\bar{I}(\underset{\rightarrow}{H}) \sim |A(\underset{\rightarrow}{H})|^2 = f_o^2 N^2$$

$$\left| J_0[z_1] + \frac{A_D}{2}\left[J_{-1}[z_0]\, e^{i\alpha} + J_1[z_0]\, e^{-i\alpha}\right] + \left(J_0[z_0] + \frac{A_D}{2}\left[J_{-1}[z_0]\, e^{i\beta} + J_1[z_0]\, e^{-i\beta}\right]\right) e^{\pi i(h+k+l)} \right|^2 \qquad \text{(A3.6)}$$

Durch Ausmultiplizieren des Betragsquadrats erhält man nach einigen Rechenschritten

$$I(\underset{\rightarrow}{H}) \sim f_o^2 N^2 \left\{ J_0^2[z_0]\,(2+2\,\mathrm{sgn}\,\bar{\jmath}) + J_1^2[z_0]\, A_D^2 \left(\sin^2\alpha + \sin^2\beta + 2\,\mathrm{sgn}\,\bar{\jmath}\,\sin\alpha\,\sin\beta\right)\right\} \qquad \text{(A3.7)}$$

mit $\mathrm{sgn}\tau = +1$ für h+k+l = gerade und $\mathrm{sgn}\tau = -1$ für h+k+l = ungerade.

Wird der Polarisationszustand der Verzerrungswelle (vgl. Anhang A 2.2.1 und A 2.2.2) mit berücksichtigt, erhält man im Fall einer longitudinalen Verzerrungswelle in Richtung $\underset{\rightarrow}{a}$ für die Intensität der Hauptreflexe $\underset{\rightarrow}{H}$ für $h \neq 0$

$$\bar{I}(\underset{\rightarrow}{H}) \sim f_o^2 N^2 \left\{ J_0^2[2\pi h A_{1v}]\,(2+2\,\mathrm{sgn}\,\bar{\jmath}) + J_1^2[2\pi h A_{1v}]\, A_D^2 \left(\sin^2(\delta-\rho) + \sin^2(\delta+\delta'-\rho-\rho') + 2\,\mathrm{sgn}\,\bar{\jmath}\left(\sin(\delta-\rho)\sin(\delta+\delta'-\rho-\rho')\right)\right)\right\} \qquad \text{(A3.8)}$$

und für h=0

$$I\,(0\;K\;1) \sim 4\, N^2 f_o^2 \qquad \text{(A 3.9)}$$

Die entsprechenden Intensitätsbeziehungen erhält man für den Fall einer transversalen Verzerrungswelle in Richtung $\underset{\rightarrow}{a}$, wenn man h durch k ersetzt.
An der Stelle $\underset{\rightarrow}{H} - \frac{q}{2\pi}$ erhält man die Intensität des Satelliten 1. Ordnung (n=1) zu:

$$I\left(\underset{\sim}{H}-\frac{q}{2\pi}\right) \sim \left|A\left(\underset{\sim}{H}-\frac{q}{2\pi}\right)\right|^2 = f_0^2 N^2 \cdot \tag{A3.10}$$

$$\left| e^{i\varphi}\left(J_1[z_1] + \frac{A_D}{2}\left[J_0[z_1] e^{i\alpha} + J_2[z_1] e^{-i\alpha}\right]\right) + \right.$$

$$\left. e^{i\gamma}\left(J_1[z_1] + \frac{A_D}{2}\left[J_0[z_1] e^{i\beta} + J_2[z_1] e^{-i\beta}\right]\right) e^{\pi i(h+k+l)} \right|^2$$

Die Auswertung des Betragsquadrats ergibt schließlich

$$\begin{aligned} I\left(\underset{\sim}{H}-\frac{q}{2\pi}\right) \sim f_0^2 N^2 \Big\{ & J_1^2[z_1]\; 2\;(1+\operatorname{sgn}\bar{J}\cos(\gamma-\varphi)) + \\ & J_0^2[z_1]\,\frac{A_D^2}{4}\,2\,(1+\operatorname{sgn}\bar{J}\cos(\alpha-\beta-\gamma+\varphi)) + \\ & J_2^2[z_1]\,\frac{A_D^2}{4}\,2\,(1+\operatorname{sgn}\bar{J}\cos(\alpha-\beta+\gamma-\varphi)) + \\ & J_1[z_1]\,J_0[z_1]\,A_D\,(\cos\alpha+\cos\beta+\operatorname{sgn}\bar{J}(\cos(\beta+\gamma-\varphi)+ \\ & \qquad \cos(\alpha-\gamma+\varphi))) + \\ & J_0[z_1]\,J_2[z_1]\,\frac{A_D^2}{4}\,2(\cos 2\alpha+\cos 2\beta+\operatorname{sgn}\bar{J}(\cos(\alpha+\beta-\gamma+\varphi)+ \\ & \qquad \cos(\alpha+\beta+\gamma-\varphi))) + \\ & J_1[z_1]\,J_2[z_1]\,A_D\,(\cos\alpha+\cos\beta+\operatorname{sgn}\bar{J}(\cos(\beta-\gamma+\varphi)+ \\ & \qquad \cos(\alpha+\beta-\varphi))) \Big\} \end{aligned} \tag{A3.11}$$

Eine entsprechende Beziehung erhält man mit n=-1 für die Satellitenintensität $I\left(\underset{\rightarrow}{H}+\frac{q}{2\pi}\right)$, wobei das Argument der Besselfunktion wieder durch $z_1 = 2\left(\underset{\rightarrow}{H}+{}^{q}/_{2\pi}\right)\cdot \underset{\rightarrow}{A}_V$ ersetzt werden muß. Zusätzlich müssen die Besselfunktionen 2. Ordnung durch die der O. Ordnung und umgekehrt

vertauscht sowie die Produkte der Besselfunktionen unterschiedlicher Ordnung subtrahiert anstatt addiert werden.

Ersetzt man z_1 durch $z_1 = 2\pi(h - \frac{q_{1v}}{2\pi}) A_{1v}$, erhält man die Intensität des Satelliten 1. Ordnung für das Beispiel einer longitudinalen Verzerrungswelle und einer Ladungsdichtewelle in Richtung $\underset{\rightarrow}{a}$ und entsprechend für $z_1 = 2\pi k A_{1v}$ das Beispiel einer transversalen Verzerrungswelle und einer Ladungsdichtewelle in Richtung $\underset{\rightarrow}{a}$.

ANHANG B: VERTEILUNG DER DOMÄNEN AUF DAS LEUCHTENDE KRISTALLVOLUMEN

Das in der magnetisch geordneten Phase von Chrom bei Röntgenexperimenten beobachtete Beugungsbild läßt sich durch eine longitudinale harmonische Verzerrungswelle beschreiben (vgl. Abschnitt 7.2). Danach ist die Modulationswelle mit dem Wellenvektor $\vec{q}_v$ ($|\vec{q}_v| = q_{1v}=q_{2v}=q_{3v}$) und der Amplitude $\vec{A}_v$ ($|\vec{A}_v| = A_{1v}=A_{2v}=A_{3v}$) parallel zu einer der kubischen Hauptachsen Anlaß für das Auftreten von n Satellitenpaaren, welche die Hauptreflexe in Richtung der entsprechenden Hauptachse begleiten.
Mit jedem im Experiment beobachteten Satellitenpaar ist demnach eine Domäne einer einheitlichen Modulationsrichtung verbunden. Im kubischen Kristallsystem gibt es 3 (6, wenn Richtung und Gegenrichtung unterschieden werden) unabhängige Domänen, für welche die Intensität des entsprechenden Satellitenpaares proportional zu dem von der Domäne belegten leuchtenden Kristallvolumen ist.

Am Beispiel der Satelliten des(220) Hauptreflexes gilt dann für die Gesamtintensität, die proportional zum Quadrat der Amplitude der Verzerrungswelle ist:

$$I = \frac{1}{2}\left\{ I(2-q_{1v}\,2\;0) + I(2+q_{1v}\,2\;0) + I(2\;2-q_{2v}\;0) + I(2\;2+q_{2v}\;0) + I(2\;2\;-q_{3v}) + I(2\;2\;+q_{3v})\right\} \qquad \text{(B. 1)}$$

Sind die Domänen auf das leuchtende Kristallvolumen gleich verteilt, folgt für die Gesamtintensität:

$$I = 3\, I(2-q_{1v}\;2\;0) \qquad \text{(B. 2)}$$

Aufschluß über die Verteilung der Domänen in zwei Hauptachsenrichtungen erhält man aus den in Tabelle B1 aufgelisteten Meßergebnissen der ω-scan's der die Hauptreflexe (220), (310) und (130) begleitenden Satelliten (vgl. Abb. 15 und Tab. 1).

$\vec{H} \pm \frac{q_v}{2\pi}$			$I(\vec{H} \pm \frac{q_v}{2\pi})$ Imp	$\left(\frac{I(H \pm \frac{q_v}{2\pi})}{L_0 P_0 \lvert F_T \rvert^2}\right)^{1/2}$ ~	$J_A[2\pi(\vec{H} \pm \frac{q_v}{2\pi}).\vec{R}_T]$ $\cdot 10^{-2}$
$2-q_v$	2	0	8 299	5.83	4.27
$2+q_v$	2	0	9 965	6,47	4.71
2	$2-q_v$	0	10 560	6.57	4.27
2	$2+q_v$	0	10 786	6.73	4,71
1	$3-q_v$	0	14 551	7.6	6.58
1	$3+q_v$	0	14 616	7.61	6.96
$1-q_v$	3	0	871	1.83	2.03
$1+q_v$	3	0	1 809	2.52	2.47
3	$1-q_v$	0	3 396	3.61	2.03
3	$1+q_v$	0	4 290	3.88	2.47
$3-q_v$	1	0	22 252	9.41	6.52
$3+q_v$	1	0	34 157	11.63	6.96

Tab. B1: Vergleich von gemessener und berechneter Satellitenintensität zur Bestimmung der Domänenverteilung auf das leuchtende Kristallvolumen.

Der Vergleich der in Spalte 3 berechneten Wurzel aus den durch die winkelabhängigen Anteile skalierten Intensitäten der Satelliten mit den in der vierten Spalte für die entsprechenden Argumente z berechneten Besselfunktionen 1.Ordnung ergibt im Rahmen der Meßgenauigkeit gleiche Anteile der Domänen in $\underline{a}^*$ bzw. $\underline{b}^*$-Richtung am leuchtenden Kristallvolumen:Da der Wert des beobachteten Intensitätsverhältnisses

$$\left(\frac{I(2-q_{1v}\ 2\ 0)}{L_0 P_0 |F_T|^2}\right)^{1/2} \Big/ \left(\frac{I(2\ 2+q_{2v}\ 0)}{L_0 P_0 |F_T|^2}\right)^{1/2} \simeq 0{,}87$$

dem aus dem Modell vorhergesagten Wert

$$\frac{J_1[2\pi(2-q_{1v})\,A_{1v}]}{J_1[2\pi(2+q_{2v})\,A_{2v}]} \simeq 0.91$$

entspricht (die Abweichung von 4% entspricht ungefähr dem Fehler,der sich bei der Anpassung der gemessenen Intensitäten durch Gaußkurven bei der Bestimmung der integralen Intensität ergibt),ist der Volumenanteil der mit der $\underline{a}^*$-Achse als Modulationsrichtung verbundenen Domäne gleich dem Volumenanteil der mit der $\underline{b}^*$-Achse als Modulationsrichtung verbundenen Domäne.
Infolge des größeren Unterschiedes im Argument der Besselfunktion ist das Verhältnis zwischen den die Hauptreflexe (13o) bzw. (31o) begleitenden Satellitenintensitäten signifikanter vom Anteil der Domänen am streuenden Kristallvolumen abhängig.
Mit

$$\left(\frac{I(3\ 1-q_{2v}\ 0)}{L_0 P_0 |F_T|^2}\right)^{1/2} \Big/ \left(\frac{I(3+q_{1v}\ 1\ 0)}{L_0 P_0 |F_T|^2}\right)^{1/2} \simeq 3.22$$

gegenüber

$$\frac{J_1\left[2\pi\left(1-q_{2v}/2\pi\right)A_{2v}\right]}{J_1\left[2\pi\left(3+q_{4v}/2\pi\right)A_{4v}\right]} \simeq 3.43$$

ergeben sich auch hier im Rahmen der Meßgenauigkeit gleiche Volumenanteile für die beiden Domänen.

Nachdem die beiden im Experiment beobachtbaren Domänen gleichen Anteil am streuenden Volumen haben,wird angenommen, daß alle drei Domänen auf das Kristallvolumen gleich verteilt sind und die Beziehung für die Gesamtintensität (B.2) gültig ist.

ANHANG C: BERECHNUNG DER BESSELFUNKTION 1. ART DER ORDNUNG n

Die Besselfunktionen 1. Art der Ordnung n können nach /63/ beschrieben werden durch

$$J_n[z] = \left(\frac{1}{2}z\right)^n \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\left(-\frac{1}{4}z^2\right)^K}{K!\,\Gamma(n+k+1)}$$

Für ganze Zahlen n folgt mit $\Gamma(n+1)=n!$

$$J_n[z] = \left(\frac{1}{2}z\right)^n \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\left(-\frac{1}{4}z^2\right)^K}{K!\,(n+k)!} \qquad \text{(C. 1)}$$

Die Besselfunktionen der Ordnung 0, 1 und 2 sind für Argumente $z \geq 0{,}1$ tabelliert /63/. Für beliebige Argumente können die Besselfunktionen der Ordnung n mit dem Fortran-Programm BESSEL berechnet werden. Dabei wird die unendliche Reihe durch eine Summe angenähert, deren kleinster Summand als Fehler neben der Ordnung der Besselfunktion, dem Argument, der Schrittweite der Argumente und der Zahl der Schritte in der Eingabe abgefragt werden.

```
0001          INTEGER SYA
0002          DIMENSION Z(1000),BES(1000),BESZ(1000)
0003          SYA=2
0004          KE=6
0005          KA=5
0006          WRITE(KA,1)
0007    1     FORMAT(' ORDNUNG N DER  BESSELFUNKTION,FEHLER A,ARGUMENT Z
             1SCHRITTWEITE,ZAHL DER ARGUMENTE NZ: ')
0008          READ(KE,2)N,A,Z1,DZ,NZ
0009    2     FORMAT(I2,3F12.0,I4)
0010          DO100 IZ=1,NZ
0011    10    Z(IZ)=Z1+(IZ-1)*DZ
0012          CALL BESSU(N,A,Z(IZ),BES(IZ),I)
0013    100   BESZ(IZ)=BES(IZ)*BES(IZ)
0014          CALL ASSIGN(SYA,'BESTAB.KUG',10)
0015          WRITE(SYA,200)N,A
0016    200   FORMAT(/,1X,'ORDNUNG = ',I2,4X,'FEHLER = ',E12.5,/)
0017          WRITE(SYA,220)
0018    220   FORMAT(5X,'ARGUMENT',11X,'J',14X,'J**2',/)
0019          DO 230 JZ=1,NZ
0020          WRITE(SYA,250)Z(JZ),BES(JZ),BESZ(JZ)
0021    250   FORMAT(1X,F12.5,4X,2(E12.5,4X))
0022    230   CONTINUE
0023          CALL CLOSE(SYA)
0024          STOP
0025          END
```

```
0001          SUBROUTINE BESSU(N,A,Z,BES,I)
0002    4     IF(N.EQ.0)GOTO6
0004          FAKN=1.
0005          DO5 J=1,N
0006          FAKN=FAKN/J
0007          TSU=FAKN
0008    5     CONTINUE
0009          GOTO7
0010    6     TSU=1.
0011    7     CONTINUE
0012          I=0
0013    8     I=I+1
        C
        C     BERECHNUNG VON 1/I!=RKFAK
        C
0014          RKFAK=1.
0015          DO10 K=1,I
0016          RKFAK=RKFAK/K
0017    10    CONTINUE
        C
        C     BERECHNUNG VON 1/(N+I)!=RNKFAK
        C
0018          RNKFAK=1.
0019          DO15 K=1,I+N
0020          RNKFAK=RNKFAK/K
0021    15    CONTINUE
0022          SU=(-0.25*Z**2)**I*RKFAK*RNKFAK
0023          TSU=TSU+SU
0024          IF(A-ABS(SU))8,20,20
0025    20    BES=(Z/2)**N*TSU
0026          RETURN
0027          END
```

Für kleine Argumente z kann der Wert der Besselfunktion aus der Reihenentwicklung abgeschätzt werden. Aus (C.1) folgt:

$$J_n[z] = (\tfrac{1}{2}\,z)^n \left\{ \frac{1}{n!} - \frac{z^2}{4(n+1)!} + \frac{z^4}{32(n+2)!} - + \ldots \right\} \qquad \text{(C. 2)}$$

Damit erhält man für die verschiedenen Ordnungen n:

$$n=0: \quad J_o[z] = 1 - \frac{z^2}{4} + \frac{z^4}{64} - + \ldots \qquad \text{(C. 3)}$$

$$n=1: \quad J_1[z] = \frac{1}{2}\,z - \frac{z^3}{16} + \frac{z^5}{384} + - \ldots \qquad \text{(C. 4)}$$

$$n=2: \quad J_2[z] = \frac{z^2}{8} - \frac{z^4}{96} + - \ldots \qquad \text{(C. 5)}$$

Bricht man die Reihenentwicklung für Argumente $z \leq 0.08$ nach dem ersten Term ab, dann ist der Fehler $\Delta J_n[z]$, dessen Quadrat in die Intensität eingeht, kleiner $2 \cdot 10^{-3}$.

ANHANG D: BERECHNUNG DER ROENTGENSTRAHLDIVERGENZEN

Zur Interpretation der mit dem fokussierenden Einkristalldiffraktometer erzielten Ergebnisse der Röntgenbeugungsexperimente in absoluten Einheiten werden die geometrischen Faktoren der Röntgenstrahlführung analytisch zusammengefaßt und für die im Experiment gegebenen Bedingungen ausgewertet.

Um die Intensitäten der Hauptreflexe und Satelliten absolut berechnen zu können (siehe Abschnitt 6.3. und 7.2.2), muß das leuchtende Kristallvolumen (vgl. Anhang A 1.1.1 und Anhang E) bekannt sein. Zu seiner Berechnung wird der Zusammenhang zwischen der vom divergenten Primärstrahl beleuchteten Kristallfläche und dem Primärstrahlfokalabstand sowie den horizontalen bzw. vertikalen Primärstrahldivergenzen für beliebige Stellungen ω der Einkristallprobe gegenüber dem Primärstrahl hergestellt.

D 1 Horizontale und vertikale Röntgenstrahldivergenzen im Strahlengang Brennfleck der Röntgenröhre - Probe.

Für die Messungen mit Mo-Strahlung wurden die horizontalen Streublenden MB des Si-Monochromators so eingestellt, daß der monochromatische Primärstrahl noch nicht begrenzt wird. Damit ist die maximale horizontale Divergenz des Strahlenbündels (Abb. D 1) durch die Öffnung b_s der Streublenden MB, den Fokalabstand B des asymmetrisch angeschliffenen Si-Einkristalls und den Abstand C der ω-Achse des Monochromator-Einkristalls zur Monochromator-Streublende MB gegeben durch

$$\tan\left(\frac{1}{2}\delta^{hor}_{PF}\right) = b_s \,/\, 2(B-C) \qquad (D.1)$$

Mit den durch die Justierung des Monochromators gegebenen Abständen ergibt sich die horizontale Divergenz des monochromatischen Primärstrahls zu $\delta_{PF}^{hor} = 0{,}76°$.

Mit dieser Divergenz beleuchtet der Primärstrahl im Abstand f_o vom Primärstrahlfokus PF die Breite b_1 der Probe P. Unter der Annahme einer genügend großen Probe ergibt sich nach Abb. D 2 für eine beliebige Stellung ω der Probe in Bezug auf den divergenten Primärstrahl die Breite $b_1(\omega)$ der asymmetrisch ausgeleuchteten Probe zu

$$b_1(\omega)=b_{11}(\omega)+b_{12}(\omega)= f_o \sin\left(\frac{1}{2}\delta_{PF}^{hor}\right)\left\{\frac{1}{\sin\left(\omega+\frac{1}{2}\delta_{PF}^{hor}\right)}\right.$$

$$\left. + \frac{1}{\sin\left(\omega-\frac{1}{2}\delta_{PF}^{hor}\right)}\right\} \qquad \text{(D. 2)}$$

Bei der im Experiment benutzten Strahlführung ist die vertikale Divergenz des Primärstrahls durch die Länge des Brennflecks (8mm) und die Höhe K der Kristallblende KB bestimmt. Mit den in Abb. D. 1 eingeführten Bezeichnungen erhält man für die maximale Vertikaldivergenz

$$t_g \delta_P^{Vert} = \frac{4b(8+K)}{4b^2-(8+K)^2} \qquad \text{(D. 3)}$$

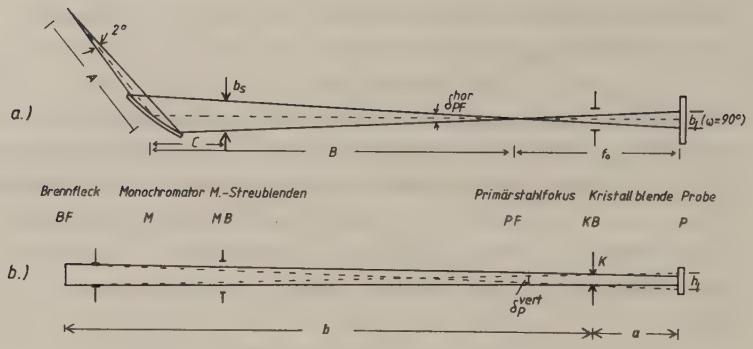


Abb. D 1: Strahlbegrenzung und Divergenzen im Strahlengang Brennfleck - Probe

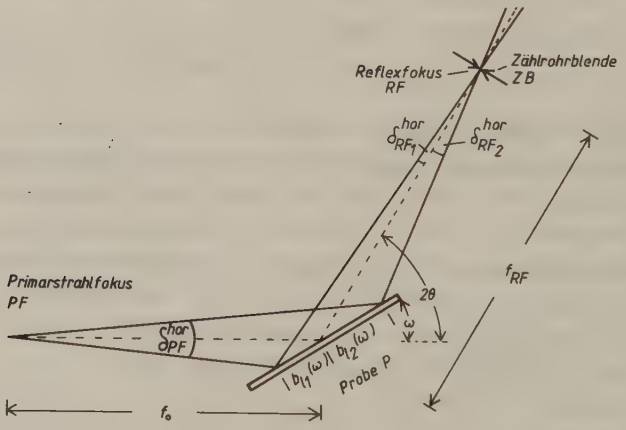


Abb. D 2: Asymmetrische Ausleuchtung der Probe und horizontale Divergenzen im Reflexfokus

Die beleuchtete Höhe der Probe ergibt sich dann zu:

$$h_1 = 2\ (a + \frac{K \cdot b}{8+K})\ tg\ \frac{1}{2}\delta_P^{vert} \qquad (D.4)$$

Die aus dem Experiment gegebenen Bedingungen ergeben damit eine Vertikaldivergenz des Primärstrahls von δ_P^{Vert} = 1.68° und führen zu einer bestrahlten Probenhöhe von h_1 = 3.3mm.

D 2 Horizontale und vertikale Divergenzen im Strahlengang Probe - Zählrohr

Bei der Ableitung der horizontalen und vertikalen Divergenzen im abgebeugten Strahl wird die elastisch gestreute, fokussierte Braggintensität gesondert von der inelastisch gestreuten, isotropen Comptonintensität betrachtet.

Um sicherzustellen, daß die gesamte Braggintensität trotz enger Kollimation (vgl. Abschnitt 4.2) bei beliebiger Kristallstellung ω im allgemeinen Strahlengang ohne Abschattung im Abstand f_{RF} eines Reflexfokus durch die Zählrohröffnung in das Be-Fenster des Zählrohrs fällt, wurden Beziehungen für die Divergenzen des abgebeugten Strahls abgeleitet und daraus der Strahlquerschnitt bestimmt. Durch Filmaufnahmen im abgebeugten Strahl in unterschiedlicher Entfernung von der Probe wurden diese Beziehungen für verschiedene Reflexe überprüft.
Zur Absolutbestimmung der Primärstrahlintensität aus dem Comptonstreuquerschnitt (vgl. Anhang A 1.2), wurde der Raumwinkel, unter dem die an der Probe isotrop gestreute Comptonintensität in das Zählrohr fällt, aus den Di-

vergenzen der Comptonstrahlung berechnet.
Dabei wurden Beziehungen hergestellt, die den Einfluß eines Vertikalsollerkollimators beliebiger Divergenz im Abstand t von der Probe auf die isotrope Comptonintensität berücksichtigen.

D 2.1 Elastisch kohärent gestreute, fokussierte Röntgenstrahlung

Die horizontale Divergenz δ_{RF}^{hor} des abgebeugten Strahls im Fokus eines Reflexes RF (Abb. D 2 und Abb. D 3) setzt sich zusammen aus

$$\delta_{RF}^{hor} = \delta_{RF1}^{hor} + \delta_{RF2}^{hor} \qquad (D.6)$$

Für die beiden Anteile kann der Zusammenhang zwischen Probenstellung ω, Beugungswinkel 2θ, Fokalabstand f_{RF} und leuchtender Probenbreite $b_{11}(\omega)$ und $b_{12}(\omega)$ für den allgemeinen Strahlengang nach Abb. D 2 wie folgt beschrieben werden:

$$\cos \delta_{RF1}^{hor} = \frac{f_{RF}+b_{11}\cdot\cos(2\theta-\omega)}{(f_{RF}^{2}+b_{11}^{2}+2f_{RF}b_{11}\cdot\cos(2\theta-\omega))^{1/2}} \qquad (D.6a)$$

$$\cos \delta_{RF2}^{hor} = \frac{f_{RF} - b_{12}\cdot\cos(2\theta-\omega)}{(f_{RF}^{2}+b_{12}^{2}-2f_{RF}b_{12}\cos(2\theta-\omega))^{1/2}} \qquad (D.6b)$$

Mit $f_{RF} = f_o$ und $\omega = \frac{2\theta}{2}$ erhält man die horizontalen Divergenzen des abgebeugten Strahls im Fall des symmetrischen Strahlengangs. Die mit der Vertikaldivergenz des Primärstrahls ($\delta_P^{Vert} = 1.68°$) an der Probe gebeugte Röntgenstrahlung wird durch keine weiteren Vertikalblenden begrenzt.

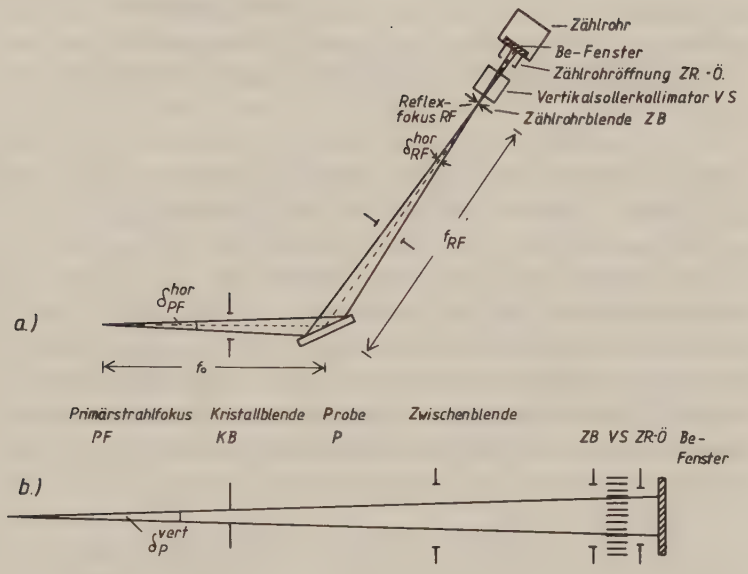


Abb. D 3: Strahlenbegrenzung und Divergenzen im abgebeugten Strahl
a) horizontale und b) vertikale Divergenzen

Der Vertikalsollerkollimator trägt auf Grund seiner gegenüber dem Röntgenstrahl weit größeren Divergenz ($\delta^{Vert}_{Soller} = 4.6°$) zu keiner Änderung der Vertikaldivergenz bei. Die endliche Dicke der einzelnen Sollerplatten bewirken jedoch eine Abschattung des Röntgenstrahls. Diese Intensitätsminderung wurde experimentell bestimmt. Bei einer gegenüber den Satellitenmessungen unveränderten Strahlführung wurde die monochromatische Primär-

strahlintensität mit und ohne Sollerkollimator bei unterschiedlicher Zahl von Absorptionsfolien gemessen und daraus der Mittelwert für die Intensitätsminderung bei der Verwendung des Vertikalsollerkollimators zu ~ 27% bestimmt.

Die Registrierung der Reflexe (200) bzw. (600) durch einen am Ort des Be-Fensters des Zählrohrs aufgestellten Röntgenfilm ergab eine Reflexhöhe von 8.2 mm in guter Übereinstimmung mit der aus der Vertikaldivergenz berechneten Höhe h_1 = 7.93 mm. Aus der am Ort des Sollerkollimators berechneten Strahlhöhe und der Dicke der Sollerplatten sowie deren Abstand wurde die Zahl der im Röntgenstrahl liegenden Sollerplatten berechnet. Sie stimmt mit den auf dem Röntgenfilm sichtbaren 12 horizontalen Abschattungen in den Reflexen überein.

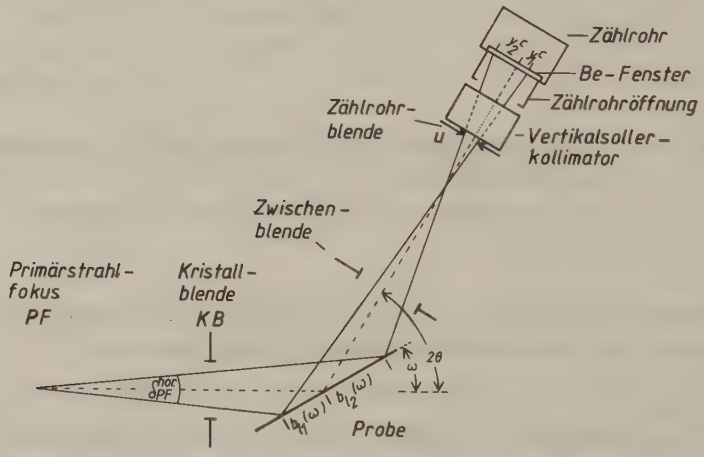


Abb. D 4 : Horizontaldivergenz der isotrop gestreuten Comptonintensität

D 2.2 Inelastisch inkohärent gestreute, isotrope Comptonintensität

Der Raumwinkel, unter dem die an der Probe isotrop gestreute Comptonintensität in das Zählrohr fällt, ergibt sich aus der durch die horizontale und vertikale Divergenz der isotropen Strahlung am Zählrohr ausgeleuchteten Breite y_{11}^c und y_{12}^c und dem Abstand Probe - Zählrohr.

Die horizontale Divergenz ist durch die Öffnung u der Zählrohrblende ZB und durch die leuchtende Probenbreite $b_1(\omega)$ gegeben. Mit den in Abb. D 4 verwendeten Bezeichnungen lassen sich die von der Comptonintensität unter dem Beugungswinkel 2θ bei der Kristallstellung ω im Abstand x von der Probe beleuchteten Breiten y_{11}^c und y_{12}^c ableiten zu:

$$y_{l_1}^c = \left(\frac{-\frac{u}{2} - b_{l_1}(\omega)\sin\gamma}{f_{RF} + b_{l_1}(\omega)\cos\gamma} \right) x + \frac{\left(-\frac{u}{2} - b_{l_1}(\omega)\sin\gamma\right) b_{l_1}(\omega)\cos\gamma}{f_{RF} + b_{l_1}(\omega)\cos\gamma} + b_{l_1}(\omega)\sin\gamma \qquad (D.7)$$

$$y_{l_2}^c = \left(\frac{\frac{u}{2} + b_{l_2}(\omega)\sin\gamma}{f_{RF} - b_{l_2}(\omega)\cos\gamma} \right) x - \frac{\left(\frac{u}{2} + b_{l_2}(\omega)\sin\gamma\right) b_{l_2}(\omega)\cos\gamma}{f_{RF} - b_{l_2}(\omega)\cos\gamma} - b_{l_2}(\omega)\sin\gamma \qquad (D.8)$$

Die insgesamt ausgeleuchtete Breite erhält man mit

$$y_1^c = y_{11}^c + y_{12}^c$$

wobei sich der Winkel γ für den allgemeinen Strahlengang zu $\gamma = 2\theta - \omega$ ergibt, während im symmetrischen Strahlengang $\gamma = \omega$ und $f_{RF} = f_o$ folgt.

Die von der Comptonintensität am Be-Fenster des Zählrohrs ausgeleuchtete Breite erhält man mit der Öffnung u=1.6mm der Zählrohrblende ZB in der Beugungsgeometrie des Hauptreflexes (600) zu y_1^c = 2.8 mm.

Die vertikale Divergenz der an der Probe isotrop gestreuten Comptonintensität wird für jedes Streuzentrum der Probe durch den Sollerkollimator gegrenzt. Für die Berechnung der Vertikaldivergenz genügt es daher, die beiden Fälle zu betrachten, in denen das Streuzentrum S einer Lücke zwischen zwei Sollerplatten ($S(0,0 \leq z_{p_1} \leq \frac{W}{2})$) bzw. einer Sollerplatte ($S(0, \frac{W}{2} \leq z_{p_2} \leq \frac{W}{2} + d$) gegenüberliegt.

Bei dem in Abb. D 5 dargestellten Sonderfall liegt das Streuzentrum S(0,0) genau der Mitte zwischen zwei Sollerplatten gegenüber. Für jede Sollerplatte $n=1,2,\ldots n_{grenz}$ kann die am Be-Fenster des Zählrohrs beleuchtete Höhe $z_1^c(n)$ und der von der Sollerplatte abgeschattete Bereich $z_s^c(n)$ berechnet werden.
Mit den Indizes l für beleuchtet und s für abgeschattet erhält man für die n-te Sollerplatte mit $1 \leq n < n_{grenz}$ als beleuchtete Höhe

$$z_1^c(n) = t_3 \, (\operatorname{tg} \alpha_1(n) - \operatorname{tg} \alpha_s(n)) \qquad (D.9)$$

und für den von der n-ten Sollerplatte abgeschatteten Bereich

$$z_s^c(n) = t_3 \, (\operatorname{tg} \alpha_s(n) - \operatorname{tg} \alpha_1(n-1)) \qquad (D.10)$$

Für die Winkel α_s (n) und $\alpha_1(n)$, unter denen der Anfang bzw. das Ende der n-ten Sollerplatte vom Streuzentrum S (0,0) aus erscheinen, gelten die Beziehungen

$$tg\alpha_1(0) = \frac{\frac{w}{2}}{t_2}$$

$$tg\alpha_1(n) = \frac{\frac{w}{2} + n(w+d)}{t_2}$$

$$tg\alpha_s(n) = \frac{\frac{w}{2} + n(w+d) - w}{t_1} \qquad \text{(D. 11)}$$

Die Grenz-Sollerplatte, die keinen Intensitätsbeitrag mehr zuläßt, ergibt sich aus der Bedingung

$$\alpha_1(n) > \alpha_s(n)$$

zu:

$$n < \left(\frac{w \cdot t_3}{t_2 - t_1} - \frac{w}{2}\right) \frac{1}{w+d} \qquad \text{(D. 12)}$$

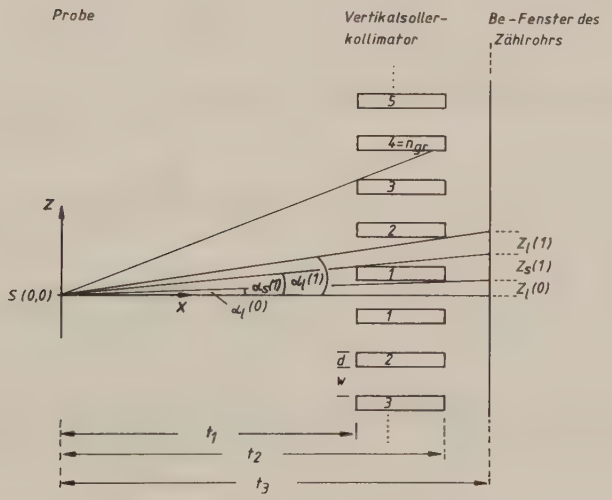


Abb. D 5: Begrenzung der Vertikaldivergenz der isotrop gestreuten Comptonintensität durch den Sollerkollimator

Die vom Streuzentrum S(O,O) isotrop gestreute Comptonintensität beleuchtet am Be-Fenster des Zählrohrs die Gesamthöhe z_1^c. Diese ergibt sich aus der Summe der Beiträge der einzelnen Sollerplatten zu:

$$z_1^c = 2(z_1(O) + \sum_{n=1}^{n_{gr}} z_1(n))$$

$$= 2t_3 \left\{ tg\alpha_1(O) + \sum_{n=1}^{n_{gr}} (tg\alpha_1(n) - tg\alpha_s(n)) \right\} \qquad (D.\ 13)$$

Für die von den Sollerplatten insgesamt abgeschatteten Bereiche folgt

$$z_s^c = 2t_3 \sum_{n=1}^{n_{gr}} (tg\alpha_s(n) - tg\alpha_1(n-1)) \qquad (D.\ 14)$$

Bei der Verallgemeinerung dieses Beispiels auf den Fall, daß das Streuzentrum S (O, z_{p1}), $O \leq z_{p1} \leq \frac{w}{2}$ einer beliebigen Stelle zwischen zwei Sollerplatten gegenüberliegt, muß die nach oben (o) (in Abb. 5 ist dies die +z-Richtung) bzw. die nach unten (u) (in Abb. D 5 ist dies die -z-Richtung) gestreute Comptonintensität gesondert diskutiert werden.
Den Beziehungen (D. 11) entsprechend erhält man für die Winkel

$$tg\, \alpha_l^o(O) = \frac{\frac{w}{2} - z_{p_1}}{t_2} \qquad tg\, \alpha_l^u(O) = \frac{\frac{w}{2} + z_{p_1}}{t_2} \qquad (D.\ 15)$$

$$tg\, \alpha_l^o(n) = \frac{\frac{w}{2} - z_{p_1} + n(w+d)}{t_2} \qquad tg\, \alpha_l^u(n) = \frac{\frac{w}{2} + z_{p_1} + n(w+d)}{t_2}$$

$$tg\, \alpha_s^o(n) = \frac{\frac{w}{2} - z_{p_1} + n(w+d) - w}{t_1} \qquad tg\, \alpha_s^u(n) = \frac{\frac{w}{2} + z_{p_1} + n(w+d) - w}{t_1}$$

Aus den Bedingungen $\alpha_1^o(n) > \alpha_s^o(n)$ und $\alpha_1^u(n) > \alpha_s^u(o)$ folgt für Grenz- Sollerplatten

$$n_{gr}^o < \left(\frac{W \cdot t_2}{t_2 - t_1} - \left(\frac{W}{2} - z_{p_1}\right)\right) \frac{1}{W+d}$$

$$m_{gr}^u < \left(\frac{W \cdot t_2}{t_2 - t_1} - \left(\frac{W}{2} + z_{p_1}\right)\right) \frac{1}{W+d} \qquad \text{(D.16)}$$

Die nach oben bzw. nach unten isotrop gestreute Comptonintensität beleuchtet am Be-Fenster des Zählrohrs die Gesamthöhe $z_1^c(0, z_{p1})$, die sich wieder als Summe der Beiträge der einzelnen Sollerplatten ergibt. Damit erhält man:

$$z_\ell^c(0, z_{p_1}) = z_\ell^o + z_\ell^u \qquad \text{(D.17)}$$

$$= t_3 \left\{ \frac{\frac{W}{2} - z_{p_1}}{t_2} + \sum_{n=1}^{n_{gr}} \left[\frac{\left(\frac{W}{2} - z_{p_1}\right) + n(W+d)}{t_2} - \frac{\left(\frac{W}{2} - z_{p_1}\right) + n(W+d) - W}{t_1} \right] + \right.$$

$$\left. \frac{\frac{W}{2} + z_{p_1}}{t_2} + \sum_{n=1}^{n_{gr}} \left[\frac{\left(\frac{W}{2} + z_{p_1}\right) + n(W+d)}{t_2} - \frac{\left(\frac{W}{2} + z_{p_1}\right) + n(W+d) - W}{t_1} \right] \right\}$$

Der von den Sollerplatten insgesamt abgeschattete Bereich folgt aus der Beziehung

$$z_s^c(0, z_{p_1}) = z_s^o + z_s^u \qquad \text{(D.18)}$$

$$= t_3 \left\{ \sum_{m=1}^{m_{gr}} \left[\frac{\left(\frac{W}{2} - z_{p_1}\right) + n(W+d) - W}{t_1} - \frac{\left(\frac{W}{2} - z_{p_1}\right) + (n-1)(W+d)}{t_2} \right] + \right.$$

$$\left. \sum_{n=1}^{m_{gr}} \left[\frac{\left(\frac{W}{2} + z_{p_1}\right) + n(W+d) - W}{t_1} - \frac{\left(\frac{W}{2} + z_{p_1}\right) + (n-1)(W+d)}{t_2} \right] \right\}$$

Für den zweiten zu betrachtenden Fall, bei dem das Streuzentrum $S(0, z_{p2})$, $\frac{w}{2} \leq z_{p2} \leq \frac{w}{2} + d$ einer Sollerplatte gegenüberliegt, erhält man mit den entsprechenden Überlegungen für die am Be-Fenster des Zählrohrs insgesamt leuchtende Höhe:

$$z_l^c(0, z_{p_2}) = z_l^o + z_l^u \qquad (D.19)$$

$$= t_3 \left\{ \sum_{n=0}^{n_{gr}} \left[\frac{\left(\frac{d}{2} - z_{p_2}\right) + n(w+d) + w}{t_2} - \frac{\left(\frac{d}{2} - z_{p_2}\right) + n(w+d)}{t_1} \right] + \right.$$

$$\left. \sum_{n=0}^{n_{gr}} \left[\frac{\left(\frac{d}{2} + z_{p_2}\right) + n(w+d) + w}{t_2} - \frac{\left(\frac{d}{2} + z_{p_2}\right) + n(w+d)}{t_1} \right] \right\}$$

und für den insgesamt abgeschatteten Bereich

$$z_s^c(0, z_{p_2}) = z_s^o + z_s^u \qquad (D.20)$$

$$= t_3 \left\{ \frac{\frac{d}{2} - z_{p_2}}{t_1} + \sum_{n=1}^{n_{gr}} \left[\frac{\left(\frac{d}{2} - z_{p_2}\right) + n(w+d)}{t_1} - \frac{\left(\frac{d}{2} - z_{p_2}\right) + (n-1)(w+d) + w}{t_2} \right] + \right.$$

$$\left. \frac{\frac{d}{2} + z_{p_2}}{t_1} + \sum_{n=1}^{n_{gr}} \left[\frac{\left(\frac{d}{2} + z_{p_2}\right) + n(w+d)}{t_1} - \frac{\left(\frac{d}{2} + z_{p_2}\right) + (n-1)(w+d) + w}{t_2} \right] \right\}$$

Für die Grenz-Sollerplatten ergeben sich aus den Bedingungen $\alpha_l^o(n) > \alpha_s^o(n)$ und $\alpha_l^u(n) > \alpha_s^u(n)$ die Beziehungen:

$$n^o < \left(\frac{bt_1}{t_2 - t_1} - (\frac{d}{2} - z_{p2}) \right) \frac{1}{w+d}$$

$$n^u < \left(\frac{bt_1}{t_2 - t_1} - (\frac{d}{2} + z_{p2}) \right) \frac{1}{w+d} \qquad \text{(D. 21)}$$

Die Beziehungen (D. 15) bis (D. 21) ermöglichen es, den Raumwinkel $\Delta\Omega^c$ zu berechnen, unter dem eine isotrop gestreute Strahlung im allgemeinen Strahlengang bei der Verwendung eines beliebigen Vertikalsollerkollimators bekannter Abmessungen im Abstand t von der Probe ins Zählrohr fällt:

$$\Delta\Omega^c = \frac{\Delta F^c}{4\pi t^2} = \frac{y_1^c \cdot z_1^c}{4\pi t^2} \qquad \text{(D. 22)}$$

Bei der im Experiment benutzten Strahlführung ergibt sich die am Be-Fenster des Zählrohrs insgesamt beleuchtete Höhe für den Fall, daß das Streuzentrum S(O,O) der Mitte zwischen zwei Sollerplatten gegenüberliegt, mit der Gleichung (D. 17) für $z_{p1}=0$ zu $z_1^c = 5.28$mm.
Für die Zahl der Sollerplatten folgt $n \leq 8{,}2$.
Auf Grund der geringen Plattendicke sowie der kleinen Abstände zwischen den einzelnen Sollerplatten im Verhältnis zum Abstand Probe - Sollerkollimator erhält man für die zusätzlich betrachteten Fälle, bei denen das Streuzentrum einem Punkt außerhalb der Mitte zwischen zwei Platten ($S(O,z_{p1})$) bzw. einer Platte ($S(O,z_{p2})$) gegenüberliegt, nur eine geringe Änderung der insgesamt beleuchteten Höhe. Mit (D. 17) bzw.(D. 19) folgt $z_1^c = 5.3$ mm .

Die von der gesamten Probenhöhe h_1 isotrop gestreute Comptonintensität beleuchtet im Abstand t_3 am Be-Fen-

ster des Zählrohrs die Höhe $\tilde{z}_1^C = h_1 + z_1^C = 8{,}6$ mm .

Damit erhält man den Raumwinkel $\Delta\Omega^C$, unter dem das Zählrohr die isotrop gestreute Comptonintensität registriert, zu:

$$\Delta\Omega^C = \frac{\Delta F^C}{4\pi t_3^2} = \frac{y_1^C \; \tilde{z}_1}{4\pi t_3^2} = 7{,}87 \cdot 10^{-5} \quad (\pm 10\%) \qquad \text{(D. 23)}$$

ANHANG E BERECHNUNG DES LEUCHTENDEN KRISTALLVOLUMENS UNTER BERÜCKSICHTIGUNG DER ABSORPTION

Bei der Reflexion von Röntgenstrahlen an einer ebenen, plättchenförmigen Probe ist das streuende Kristallvolumen im allgemeinen Strahlengang in der Kristallstellung ω für den Beugungswinkel 2θ durch den Primärstrahlquerschnitt S, den Absorptionskoeffizienten μ und den Weg des einfallenden Strahls $w_1 = y/\sin\omega$ sowie des reflektierten Strahls $w_2 = y/\sin(2\theta-\omega)$ bestimmt:

$$V = \int_0^{S/\sin\omega} dx \int_0^{\infty} e^{-\mu\left(\frac{1}{\sin\omega} + \frac{1}{\sin(2\theta-\omega)}\right)y} dy = \frac{S}{\mu} \cdot \left(\frac{1}{1+\frac{\sin\omega}{\sin(2\theta-\omega)}}\right) \qquad (E.1)$$

Ist die beleuchtete Kristallfläche $A(\omega)$ und nicht der Primärstrahlquerschnitt S die strahlbegrenzende Fläche, erhält man mit der Beziehung (D.5) das leuchtende Kristallvolumen im allgemeinen Strahlengang zu:

$$V_l(\omega) = \frac{b_e(\omega)\, h_e}{\mu} \left(\frac{1}{1+\frac{\sin\omega}{\sin(2\theta-\omega)}}\right) \qquad (E.2)$$

Mit $\omega = 2\theta/2$ folgt daraus für den symmetrischen Strahlengang (vgl./44/) :

$$V_l(\omega) = \frac{b_e(\omega)\, h_e}{2\mu} \qquad (E.3)$$

Für die Berechnung der inelastisch inkohärent gestreuten Intensität (vgl. Abschnitt 6.2.4) muß der Absorptionskoeffizient μ für den Weg w_2 der reflektierten Strahlung durch den modifizierten Absorptionskoeffizienten $\mu_c = \mu + \Delta\mu$ ersetzt werden /65/.
Dabei erhält man $\Delta\mu$ aus der von Victoreen angegebenen empirischen Beziehung für den Massenschwächungskoeffizienten /59/

$$\mu/\rho = C\lambda^3 - D\lambda^4 + \sigma_{K-N}\, N\, Z/A \qquad (E.4)$$

als ersten Term der Taylorentwicklung zu:

$$\Delta\mu = \frac{d\mu}{d\lambda}\,\Delta\lambda_c = (3C\lambda^2 - 4D\lambda^3)\,\frac{h}{mc}\,(1 - \cos 2\theta) \qquad (E.5)$$

Mit dem vom Beugungswinkel 2θ abhängigen modifizierten Absorptionskoeffizienten μ_c ergibt sich dann das leuchtende Kristallvolumen zu :

$$V = \int_0^{A(\omega)/\sin\omega} dx \int_0^{\infty} e^{-\left(\frac{\mu}{\sin\omega} + \frac{\mu_c}{\sin(2\theta-\omega)}\right) y}\, dy \qquad (E.6)$$

Daraus folgt schließlich :

$$V_l(\omega) = b_l(\omega)\, h_l\left(\frac{1}{\mu + \mu_c \frac{\sin\omega}{\sin(2\theta-\omega)}}\right) \qquad (E.7)$$

Der Massenschwächungskoeffizient (μ/ρ) von Chrom ergibt sich mit den tabellierten Werten /59/ der Konstanten C, D, Z/A und des Klein-Nishina Streukoeffizienten σ_{K-N} für $Mo_{K\alpha 1}$-Strahlung aus (E.4) zu :

$(\mu/\rho)_{Cr}^{Mo_{K\alpha 1}} = 31.77\ cm^2/g$ (zum Vergleich $(\mu/\rho)_{Cr}^{Mo_{K\alpha}} =$ 30,4 cm^2/g aus /44/). Für $2\theta = 90^\circ$ erhält man mit (E.5) den Wert von $\Delta\mu/\rho = 2{,}99\ cm^2/g$.
Mit $\rho = 7{,}02\ g/cm^3$ /45/ folgt schließlich der modifizierte Absorptionskoeffizient zu $\mu_c = 250{,}4\ cm^{-1}$ (zum Vergleich $\mu = 228{,}8\ cm^{-1}$).

ANHANG F BERECHNUNG DES FOKALABSTANDES f_{RF} EINES REFLEXES IM ALLGEMEINEN STRAHLENGANG

Bei dem fokussierenden Einkristalldiffraktometer wird eine Seemann-Bohlin Anordnung in Verbindung mit einem fokussierenden Monochromator verwendet (vgl. Abb.9).Damit ist durch den Fokus des Primärstrahls PF und die plättchenförmige Probe als Tangente der Fokalkreis bestimmt,auf dem auch der Fokus RF des abgebeugten Strahls liegt.Da sich im allgemeinen beim Drehen der Probe im Primärstrahl sowohl die Lage als auch der Radius des Fokalkreises ändert (vgl. Abb.1o),muß der Fokalabstand f_{RF} für jeden Reflex bestimmt werden.

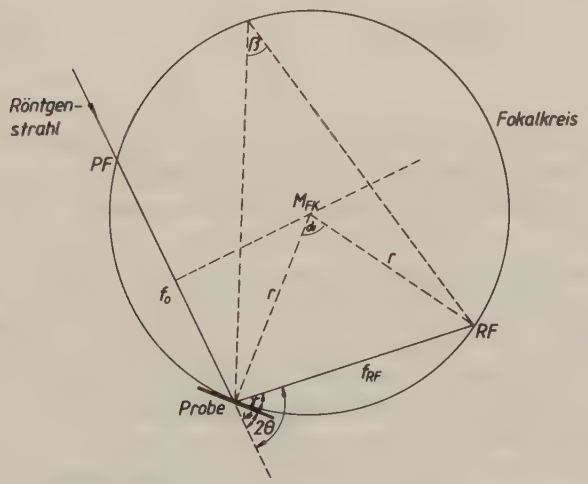


Abb. F1: Fokalkreisgeometrie des Einkristalldiffraktometers in Reflexionsstellung

Der geometrischen Konstruktion des Fokalkreises (vgl. Abb. F1) aus dem Schnittpunkt der Probennormalen mit der Mittelsenkrechten der Verbindung Primärstrahlfokus PF - Probe P entsprechend, erhält man für den Radius r_{FK} des Fokalkreises in der Kristallstellung ω :

$$r_{FK} = \frac{f_o}{2 \sin\omega} \qquad (F.1)$$

Da der Sehnentangentenwinkel γ gleich dem Peripheriewinkel β und dieser halb so groß wie der zum gleichen Kreisbogen gehörende Zentriwinkel α ist, gilt:

$$2\theta - \omega = \gamma = \beta = \frac{1}{2}\alpha$$

Aus $f_{RF} = 2\, r_{FK} \sin {}^{\alpha}/2$ folgt mit (F.1) für den Fokalabstand:

$$f_{RF} = f_o \frac{\sin(2\theta-\omega)}{\sin\omega} \qquad (F.2)$$

Aus der geometrischen Interpretation der Bragg'schen Gleichung durch die Ewaldkonstruktion in Abb. F2 folgt,daß der Einkristall um den Winkel ω gedreht werden muß,damit der reziproke Gitterpunkt (hkl) in Reflexionsstellung gelangt.Dabei ist ω durch die Orientierung des Einkristalls auf dem Diffraktometer bestimmt.Um die Berechnung von ω für beliebige Orientierungen der Probe zu ermöglichen, wird ein neues Koordinatensystem im reziproken Raum eingeführt.Es ist in der Nullstellung der Probe ($\omega = o^{\circ} \triangleq$ Einkristallfläche parallel zum Röntgenstrahl) definiert durch den Vektor $\underline{u}_1^*$ parallel zur Probennormalen,den Vektor $\underline{u}_2^*$ entgegen der Richtung des Röntgenstrahls und den Vektor $\underline{u}_3^*$ parallel zur Diffraktometerachse,so daß gilt:

$$\begin{aligned} \vec{u}_1^* &= t_{11}\vec{a}^* + t_{12}\vec{b}^* + t_{13}\vec{c}^* \\ \vec{u}_2^* &= t_{21}\vec{a}^* + t_{22}\vec{b}^* + t_{23}\vec{c}^* \\ \vec{u}_3^* &= t_{31}\vec{a}^* + t_{32}\vec{b}^* + t_{33}\vec{c}^* \end{aligned} \qquad \text{(F.3)}$$

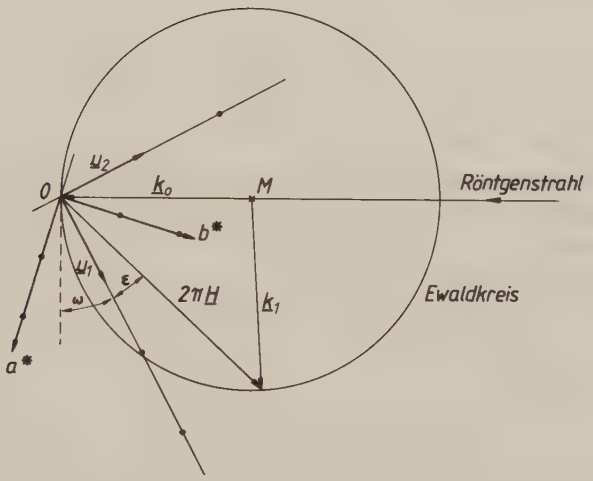


Abb. F2: Ewaldkonstruktion für den reziproken Gittervektor $2\pi\vec{H} = h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^* = m\vec{u}_1^* + n\vec{u}_2^*$

Damit läßt sich jeder reziproke Gittervektor (vgl. Abb. F2) in dem auf das Diffraktometer bezogene Koordinatensystem beschreiben durch:

$$2\pi\vec{H} = h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^* = m\vec{u}_1^* + n\vec{u}_2^* + p\vec{u}_3^*$$

Dabei transformieren sich die Indizes mit der inversen Transformationsmatrix:

$$\begin{pmatrix} m \\ n \\ p \end{pmatrix} = (t_{ik})^{-1}_{i,k=1,2,3} \begin{pmatrix} h \\ k \\ l \end{pmatrix} \qquad \text{(F.4)}$$

Mit $\theta = \omega + \varepsilon$ und $\mathrm{tg}\varepsilon = \frac{n|\underset{\rightarrow}{u}_2|}{m|\underset{\rightarrow}{u}_1|}$ (vgl. Abb. F2)

folgt: $\omega = \theta - \mathrm{arctg}\frac{n|\underset{\rightarrow}{u}_2|}{m|\underset{\rightarrow}{u}_1|}$ (F.5)

Damit läßt sich der Fokalabstand f_{RF} mit (F.3) allgemein darstellen durch:

$$f_{RF} = f_o \frac{\sin\{\theta + \mathrm{arctg}\frac{n|\underset{\rightarrow}{u}_2|}{m|\underset{\rightarrow}{u}_1|}\}}{\sin\{\theta - \mathrm{arctg}\frac{n|\underset{\rightarrow}{u}_2|}{m|\underset{\rightarrow}{u}_1|}\}} \qquad (F.6)$$

Bei bekannter Metrik kann somit für einen Einkristall bekannter Orientierung die Reflexionsstellung ω (vgl.(F.5)) für jeden in der Beugungsebene liegenden reziproken Gittervektor berechnet werden.Die Bragg'-sche Gleichung liefert dann den Beugungswinkel 2θ, unter dem der entsprechende Reflex im Abstand f_{RF} (vgl. (F.6)) fokussiert wird.

Für Reflexe (hkl) mit $2\pi\underset{\rightarrow}{H} = h\underset{\rightarrow}{a}^* + k\underset{\rightarrow}{b}^* + l\underset{\rightarrow}{c}^* = m\underset{\rightarrow}{u}_1^*$

entspricht die Reflexionsstellung ω des Einkristalls nach (F.5) dem halben Beugungswinkel: $\omega = 2\theta/2$.
Mit (F.6) folgt dann der Fokalabstand $f_{RF} = f_o$ des symmetrischen Strahlengangs.

Entsprechende Beziehungen gelten,wenn das Diffraktometer im Vorstrahlbereich verwendet wird.Mit dem Radius des Fokalkreises: $r_{FK}^{vor} = f_o/2\cos\omega$ folgt der Fokus des Reflexes im Abstand f_{RF} zu:

$$f_{RF} = f_o \frac{\cos(2\theta - \omega)}{\cos\omega}$$

$$= f_o \frac{\cos\{\theta + \mathrm{arctg}\frac{n|\underset{\rightarrow}{u}_2|}{m|\underset{\rightarrow}{u}_1|}\}}{\cos\{\theta + \mathrm{arctg}\frac{n|\underset{\rightarrow}{u}_2|}{m|\underset{\rightarrow}{u}_1|}\}} \qquad (F.7)$$

ANHANG G ZUSAMMENHANG ZWISCHEN DEM WELLENVEKTOR $\vec{q}_m$ DER PRIMÄREN SDW UND DEM WELLENVEKTOR $\vec{q}_v$ DER MAGNETOSTRIKTIVEN VERZERRUNGSWELLE

In einem vereinfachten mikroskopischen Modell kann die Energie eines magnetischen Systems beschrieben werden durch

$$\mathcal{H} = -\sum_{i,k} J_{ik}\, \vec{S}_i \cdot \vec{S}_k \quad , \tag{G.1}$$

wobei J_{ik} das Austauschintegral ist.

Wird in einem eindimensionalen Modell sowohl die Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn als auch die Wechselwirkung zwischen übernächsten Nachbarn berücksichtigt, lautet der rein magnetische Anteil der Energie:

$$\mathcal{H}_0 = -J_1 \sum_m \vec{S}_m \cdot \vec{S}_{m+1} - J_2 \sum_m \vec{S}_m \cdot \vec{S}_{m+2} \quad . \tag{G.2}$$

Mit $$\vec{S}_m = \hat{\vec{S}} \cos q_m m \tag{G.3}$$

für die Spindichte ergibt sich dann

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_0 &= -J_1 \hat{S}^2 \sum_m \cos q_m m \cos q_m (m+1) - J_2 \hat{S}^2 \sum_m \cos q_m m \cos q_m (m+2) \\ &= -J_1 \hat{S}^2 \frac{N}{2} \cos q_m - J_1 \hat{S}^2 \frac{N}{2} \delta(q_m) + J_1 \hat{S}^2 \frac{N}{2} \delta(q_m - \pi) \\ &\quad - J_2 \hat{S}^2 \frac{N}{2} \cos 2q_m - J_2 \hat{S}^2 \frac{N}{2} \delta(q_m) - \hat{J}_2 S^2 \frac{N}{2} \delta(q_m - \pi)\end{aligned} \tag{G.4}$$

Daraus folgt:

1.) für $q_m = 0$ die Energie des ferromagnetischen Zustandes:

$$\mathcal{H}_0^{F} = -N\hat{S}^2 (J_1 + J_2) \tag{G.5}$$

2.) für $q_m = \pi$ die Energie des antiferromagnetischen Zustandes:

$$\mathcal{H}_0^{AF} = -N\hat{S}^2 (-J_1 + J_2) \tag{G.6}$$

3.) für $q_m \neq 0$ und $q_m \neq \pi$ folgt aus $\frac{\partial \mathcal{H}_0}{\partial q_m} = 0$:

$$0 = J_1 \sin q_m \left(1 + 4 \frac{J_2}{J_1} \cos q_m\right) \tag{G.7}$$

für $\sin q_m = 0$ ergibt sich die ferromagnetische (vgl. (G.5)) bzw. die antiferromagnetische Lösung (vgl. (G.6)).

für $\cos q_m = - J_1/4J_2$ ergibt sich die Sinoidalstruktur mit der Energie

$$\mathcal{H}_0^S = - N \hat{S}^2 \frac{1}{2} \left(- \frac{J_1^2}{8J_2} - J_2 \right) \qquad (G.8)$$

Daß die Sinoidalstruktur zu einem Energieminimum führen kann, folgt aus (G.5), (G.6) und (G.8) für z.B. $J_1=1$ und $J_2=-1$.

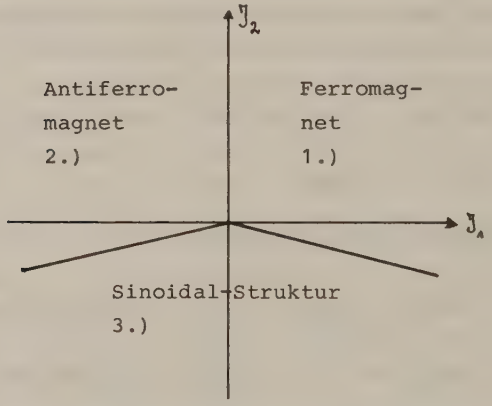


Abb. G1: Kopplung der Spins in Abhängigkeit des Vorzeichens von J_1 und J_2

In Chrom prägt die Spindichtewelle dem Kristallgitter ein periodisches Spannungsfeld auf, das als elastische Antwort des Gitters eine Verzerrungswelle verursacht. Für dieses System läßt sich die Energie beschreiben durch:

$$\mathcal{H} = - \left\{ \sum_{i,\kappa} J_{i\kappa}^{\circ} + \sum \frac{\partial J_{i\kappa}}{\partial \varepsilon} \underline{\varepsilon}(\underline{r}) \right\} \underline{S}_i(\underline{r}_i) \cdot \underline{S}_\kappa(\underline{r}_\kappa) + \frac{1}{2} f \varepsilon^2(r)$$

$$= \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2 \qquad (G.9)$$

wobei $\mathcal{H}_0$ den rein magnetischen Anteil zur Gesamtenergie angibt, während $\mathcal{H}_A$ den magnetoelastischen Beitrag beschreibt, in dem

$$\underset{\rightarrow}{\xi}(\underset{\rightarrow}{r}) = \underset{\rightarrow}{\hat{a}} \cos \underset{\rightarrow}{q}_v \underset{\rightarrow}{r} \qquad \text{(G.10)}$$

die lokale Verzerrung ist.
Der dritte Term beinhaltet die elastische Verzerrungsenergie mit f als Federkonstanten.

Wird wieder die Wechselwirkung zwischen nächsten und zwischen übernächsten Nachbarn berücksichtigt, lautet die Energie:

$$\begin{aligned}\mathcal{H} = & - J_1 \sum_m \underline{S}_m \cdot \underline{S}_{m+1} - J_2 \sum_m \underline{S}_m \cdot \underline{S}_{m+2} \\ & - \frac{\partial J_1}{\partial \varepsilon} \sum_m \varepsilon_{m,m+1} \underline{S}_m \cdot \underline{S}_{m+1} - \frac{\partial J_2}{\partial \varepsilon} \sum_m \varepsilon_{m,m+2} \underline{S}_m \cdot \underline{S}_{m+2} \\ & + \frac{1}{2} f_1 \varepsilon^2_{m,m+1} + \frac{1}{2} f_2 \varepsilon^2_{m,m+2} \end{aligned} \qquad \text{(G.11)}$$

Im verzerrten Gitter ist der Ort des m-ten Atoms gegeben durch (a=Gitterkonstante) :

$$x_m = m \left(a - \frac{\hat{a}}{2} \right) - \frac{\hat{a}}{2} \cos q_v m \qquad \text{(G.12)}$$

Damit folgt für die Verzerrung zwischen dem m-ten und dem (m+1)-ten Atom:

$$\begin{aligned}\varepsilon_{m,m+1} &= x_{m+1} - x_m - a \\ &= - \frac{\hat{a}}{2} (1 + \cos q_v m \, (\cos q_v - 1) - \sin q_v m \sin q_v) \end{aligned} \qquad \text{(G.13)}$$

und entsprechend für die Verzerrung zwischen dem m-ten und dem (m+2)-ten Atom:

$$\begin{aligned}\varepsilon_{m,m+2} &= x_{m+2} - x_m - 2a \\ &= - \frac{\hat{a}}{2} (2 + \cos q_v m \, (\cos 2q_v - 1) - \sin q_v m \sin 2q_v) \end{aligned} \qquad \text{(G.14)}$$

Mit $j_1 = \frac{J_{mn}}{\partial \varepsilon} \neq 0$ nur für $n = m+1$

und $j_2 = \frac{J_{mn}}{\partial \varepsilon} \neq 0$ nur für $n = m+2$ (G.15)

sowie $\underset{\rightarrow}{S}_m = \hat{\underset{\rightarrow}{S}} \cos q_m m$

und $\underset{\rightarrow}{S}_{m+1} = \hat{\underset{\rightarrow}{S}} \cos q_m (m+1)$

und $\underset{\rightarrow}{S}_{m+2} = \hat{\underset{\rightarrow}{S}} \cos q_m (m+2)$

folgt mit (G.13) und (G.14) der magnetoelastische Beitrag zu:

$$\mathcal{H}_A = j_{\partial_1} \hat{S}^2 \frac{\hat{Q}}{2} \sum_m \left\{ 1 + \cos q_\nu m (\cos q_\nu - 1) - \sin q_\nu m \sin q_\nu \right\} \cos q_m m \cos q_m (m+1)$$

$$+ j_{\partial_2} \hat{S}^2 \frac{\hat{Q}}{2} \sum_m \left\{ 2 + \cos q_\nu m (\cos 2q_\nu - 1) - \sin q_\nu m \sin 2q_\nu \right\} \cdot$$

$$\cdot \cos q_m m \cos q_m (m+2) \qquad \text{(G.16)}$$

Die trigonometrischen Funktionen $\sin m\rho_i$, $\sin m\rho_k$ und $\cos m\rho_i$, $\cos m\rho_k$ bilden ein normiertes orthogonales Funktionensystem, für das gilt:

$$\sum_m \cos 2q_m m \cos q_\nu m = \sum_m \sin 2q_m m \sin q_\nu m =$$

$$\delta_{2q_m, q_\nu} = \begin{cases} 1 & \text{für } 2q_m = q_\nu \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \qquad \text{(G.17)}$$

Damit lassen sich die Summen wie folgt auswerten:

$$\mathcal{H}_A = j_{\partial_1} \hat{S}^2 \frac{\hat{Q}}{2} \frac{N}{2} \left\{ \cos q_m + \left[\cos q_m (\cos q_\nu - 1) + \sin q_m \sin q_\nu \right] \delta_{2q_m, q_\nu} \right\}$$

$$+ j_{\partial_2} \hat{S}^2 \frac{\hat{Q}}{2} \frac{N}{2} \left\{ 2 \cos 2q_m + \left[\cos 2q_m (\cos 2q_\nu - 1) + \sin 2q_m \sin 2q_\nu \right] \delta_{2q_m, q_\nu} \right\}$$

(G.18)

Der magnetoelastische Term ergibt damit nur dann einen zusätzlichen Energiebeitrag, wenn $2q_m = q_v$ ist. In diesem Fall gilt:

$$\mathcal{H}_1(2q_m=q_v) = j_1 \hat{S}^2\hat{a} \frac{N}{4} \cos q_m + j_2 \hat{S}^2 \hat{a} \frac{N}{2} \cos 2q_m \quad (G.19)$$

Mit (G.13) und (G.14) ergibt sich die elastische Verzerrungsenergie zu:

$$\mathcal{H}_2 = f_1 \hat{a}^2 \frac{N}{8} (2-\cos q_v) + f_2 \hat{a}^2 \frac{N}{8} (5-\cos 2q_v) \quad (G.20)$$

Damit erhält man für die Gesamtenergie:

$$\mathcal{H}(q_v=2q_m) = \mathcal{H}_0 + \hat{S}^2\hat{a} \frac{N}{4} (j_{d1} \cos q_m + 2 j_{d2} \cos 2q_m)$$

$$+ \hat{a}^2 \frac{N}{8} \left(f_1 (2-\cos 2q_m) + f_2 (5-\cos 4q_m) \right) \quad (G.21)$$

Durch Minimalisieren des Hamilton Operators folgt:

$$\frac{\partial \mathcal{H}}{\partial \hat{a}} = 0 = \hat{S}^2 (j_{d1} \cos q_m + 2 j_{d2} \cos 2q_m) +$$

$$\frac{\hat{a}}{2} \left\{ f_1 (2-\cos 2q_m) + f_2 (5-\cos 4q_m) \right\} \quad (G.22)$$

Damit findet man für die Amplitude:

$$\hat{a} = - \hat{S}^2 \frac{(j_1 \cos q_m + 2 j_2 \cos 2q_m)}{(f_1 (2-\cos 2q_m) + f_2 (5-\cos 4q_m)} \quad (G.23)$$

Aus $\frac{\partial^2 \mathcal{H}}{\partial \hat{a}^2} > 0$ für

$$f_1 (2-\cos 2q_m) + f_2 (5-\cos 4q_m) > 0 \quad (G.24)$$

folgt, daß das Minimum stabil ist.

Für $\hat{a} > 0$ erhält man eine Kompression des Gitters (vgl. (G.12)). Mit der Voraussetzung (G.24) bedeutet dies, daß

$$j_1 \cos q_m + 2j_2 \cos 2q_m < 0 \qquad \text{(G.25)}$$

Mit $\cos q_m = -J1/4J2$ (vgl. (G.8)), für dessen erlaubte Werte gilt $-1 \leq J_1/4J_2 \leq 1$, folgt dann aus (G.25) für die Beziehung zwischen J_1, J_2, j_1 und j_2

$$-j_1 \frac{J_1}{4J_2} + j_2 \left(\frac{J_1^2}{4J_2^2} - 2 \right) < 0 \qquad \text{(G.26)}$$

Literaturverzeichnis

/ 1/ J.M.Cowley: Modulated Structures-1979, AIP-Conference Proceedings No. 53, ed.by J.M.Cowley, J.B.Cohen, M.B. Salamon, B.J.Wünsch, Am.Inst.of Phys., New York 1979

/ 2/ H.Kayser: Handbuch der Spektroskopie I, Leipzig 1900

/ 3/ U.Dehlinger: Z.Krist. 65, 615-631,(1927)

/ 4/ G.D.Preston: Proc.Roy.Soc.London, S.A. 167, 526-538,(1938)

/ 5/ J.D.Axe: Proceedings of the Conference on Neutron-scattering, Gatlinburg Tennesee 1975, ed.by R.M.Moon 353-378,(1976)

/ 6/ A.Janner,T.Janssen: Phys.Rev.B15, 643-658, (1977)

/ 7/ J.Petzelt: Phase transition Vol.2, 155-230,(1981)

/ 8/ M.Korekawa: Theorie der Satellitenreflexe, Habilitationsschrift der Ludwig-Maximilian-Universität München, 1967

/ 9/ H.Böhm: Eine erweiterte Theorie der Satellitenreflexe und die Bestimmung der modulierten Struktur von $NaNo_2$, Habilitationsschrift der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster, 1977

/10/ A.Yamamoto: Acta Cryst. A38, 87-93,(1982)

/11/ P.M.de Wolff: Acta Cryst. A37, 625-636, (1981)

/12/ M.Iizumi,J.D.Axe,G.Shirane,K.Shimaoko: Bull.Am.Phys. Soc. 21, 292,(1976)

/13/ D.E.Moncton,J.D.Axe,F.J.DiSalvo: Phys.Rev.Lett.34, 734,(1975)

/14/ J.D.Axe: Neutron inelastic scattering 1977 Vol.II Wien, 1978

/15/ S.Aubry: Solitons and Condensed Matter Physics, ed.by A.R.Bishop,T.Schneider, Springer Verlag, New York 1978

/16/ F.Denoyer,R.Comés,A.F.Garito,A.J.Heger: Phys.Rev.Lett. 35, 445,(1975)

/17/ W.L.Mc Millan: Phys.Rev. B14, 1496-1508,(1976)

/18/ H.Cailleau,F.Mussa,C.M.E.Zeyen,J.Bouillot: Solid State Comm. 33, 407,(1980)

/19/ W.Adlhart,H.Blank,H.Jagodzinski: Acta Cryst. A38, 505-510,(982)

/20/ A.D.Novaco: Phys.Rev. B22, 1645-1659,(1980)
/21/ J.P.Boucher,L.P.Regnault: Solid State Comm.33, 171,(1980)
/22/ M.Steiner,K.Kakurai,J.K.Kjems: Workshop on: The Contribution of Neutron Scattering to the Study of Incommensurable Modulations, ILL Grenoble 1980
/23/ J.D.Axe: Phil.Trans.R.Soc.London B290, 593-603,(1980)
/24/ A.W.Overhauser: Phys.Rev.167, 691-698,(1968)
/25/ A.W.Overhauser: Phys.Rev.128, 1437-1452,(1962)
/26/ P.A.Fedders,P.C.Martin: Phys.Rev. 143, 245,(1965)
/27/ W.M.Lomer: Proc.of the phys.Soc. Vol.80, 489-496,(1962)
/28/ C.Y.Young,J.B.Sokoloff: J.Phys.F:Metal Physic 4, 1304-1319,(1974)
/29/ A.Kotani: J.of the Phys.Soc.London 44, 1455-1464,(1978)
/30/ Y.Teraoka,J.Kanamori: Magnetismuskonferenz Amsterdam 1976
/31/ D.T.Keating: Phys.Rev. 178, 732-742,(1968)
/32/ A.Arrott,S.A.Werner,H.Kendrick: Phys.Rev.Lett.14, 1022-1024,(1965)
/33/ A.Arrott: Antiferromagnetism in Metals, Magnetism IIB ed.by G.T.Rado,H.Suhl, Academic Press New York 1966
/34/ A.S.Barker Jr.,J.A.Ditzenberger: Phys.Rev. B1, 4378-4400,(1970)
/35/ A.Kotani: J.Phys.Soc.Jap. 37, 1493-1501,(1974)
/36/ W.C.Koehler,R.M.Moon,A.L.Trego,A.R.Mackintosh: Phys. Rev. 151, 405-413,(1966)
/37/ T.Moriya: Progr.Theor.Phys. 33, 157-183,(1965)
/38/ Y.Tsunoda,M.Mori,N.Kunitomi,Y.Teraoka,J.Kanamori: Solid State Comm. 14, 287-289,(1974)
/39/ R.Pynn,W.Press,S.M.Shapiro,S.A.Werner: Phys.Rev. B13, 295-298,(1976)
/40/ S.Ohba,K.Saito,S.Wako: Acta Cryst. A38, 103-108,(1982)
/41/ H.Umebayastie,G.Shirane,B.C.Fracer,W.B.Daniels: J.Phys. Jap. 24, 368,(1968)
/42/ M.O.Steinitz,L.H.Schwarz,J.A.Marcus,E.Fawcett,W.A.Reed: Phys.Rev.Lett. 23, 979-982,(1969)
/43/ V.A.Gordienko,V.I.Nikolaev : JETP-Letters 14, 3-5,(1971)
/44/ K.Sagel: Tabellen zur Röntgenstrukturanalyse, Springer-verlag Berlin,1958

/45/ Handbook of Chemistry and Physics, No 62, CRC Press, Cleveland, 1981

/46/ G.F.Knoll: Radiation Detection And Measurement, J.Wiley u.Sons New York, 1979

/47/ A.H.Compton,S.A.Allison: X-Rays in Theory and Experiment, D.Van Nostrand Company, Princeton, 1967

/48/ L.V.Azâroff,R.Kaplow,N.Kato,R.J.Weiss,A.J.C.Wilson, R.A.Young: X-Ray Diffraction, Mc Graw Hill New York, 1974

/49/ W.H.Zachariasen: Theory of X-Ray Diffraction in Crystals, Dover Publications New York, 1945

/50/ C.F.Eagen,S.A.Werner: Solid State Comm.16, 1113-1116, (1975)

/51/ J.D.Axe: Phys.Rev. B21,4181, (1980)

/52/ A.W.Overhauser: Phys.Rev. B3, 3173-3182, (1971)

/53/ P.M.Platzman,N.Tzoar: Phys.Rev.B2, 3556-3559, (1970)

/54/ M.Brunel,F.De Bergevin: Acta Cryst. A37, 314-324 (1981)

/55/ S.A.Werner,A.Arrott,H.Kendrick: Phys.Rev.155, 528-539, (1967)

/56/ J.Schneider: Nuclear Science Appl.Bd.I, 227-276 (1981)

/57/ I.N.Bronstein,K.A.Semendjajew: Taschenbuch der Mathematik, Verlag Harri Deutsch, Zürich, 1971

/58/ R.W.James: The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays, G.Bell and Sons, London, 1967

/59/ International Tables For X-Ray Crystallography Bd. III The Kynoch Press, Birmingham, 1968

/60/ O.Klein,Y.Nishina: Zeitschrift f.Physik 52, 853-868,(1929)

/61/ G.Breit: Phys.Rev.27, 362, (1926)

/62/ P.A.M.Dirac: Proc.Roy.Soc.III, 405, (1926)

/63/ M.Abramowitz,I.A.Stegun: Handbook of Mathematical Functions, Dover Publications New York, 1965

/64/ International Tables For X-Ray Crystallography IV , The Kynoch Press, Birmingham, 1974

/65/ F.Hajdu,G.Pálinkás: J.Appl.Cryst.5, 395-401,(1972)

/66/ L.W.Bos,D.W.Lynch,J.L.Stanford: Physics Letters 30A, 17-18,(1969)

Herrn Prof. Dr. W. Prandl danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit. Durch seine stete Bereitschaft zu lehrreichen Gesprächen trug er wesentlich zu ihrem Fortgang bei.
Herrn Dr. K. Knorr danke ich besonders für seine Unterstützung bei experimentellen Problemen und für die vielen klärenden Diskussionen und hilfreichen Ratschläge.
Ferner gilt mein Dank Herrn Dr. J. Ihringer, der mir bereitwillig Hilfe im Umgang mit der Rechenanlage des Instituts gewährte. In Zusammenarbeit mit Herrn Dipl. Phys. M. Oswald erstellte er die Programme zur Auswertung der Meßergebnisse.
Herr Dr. M. Brendle stellte den Festkörperdetektor zur Verfügung und ermöglichte damit die Messung der Comptonintensität.
Die Mitarbeiter der Institutswerkstatt, die Herrn V. Rilling, E. Schneider und H. Horst unterstützten mich stets hilfsbereit und konstruktiv bei der Vielzahl technischer Probleme.
Für die sorgfältige Anfertigung der Zeichnungen und Bilder dieser Arbeit danke ich Herrn K. Hagdorn.
Ihnen allen, sowie den nichtgenannten Mitgliedern des Instituts danke ich für das kollegiale Arbeitsklima.
Meinen Eltern verdanke ich meine Ausbildung. Meiner Frau danke ich für ihre Geduld und ihr Verständnis während der Dauer dieser Arbeit.

Dem Bundesministerium für Forschung und Technologie danke ich für die finanzielle Unterstützung.

Lebenslauf

Name: Werner Kugler

Geburtsdatum: 10. Juni 1949

Geburtsort: Albstadt-Ebingen

Familienstand: verheiratet

Eltern: Karl Kugler, Handelsvertreter und
Gerda Kugler, geb. Gerstenecker,
Hausfrau

Schulbildung: 1956-1961 Volksschule in Weilstetten
1961-1969 Gymnasium in Balingen

Wehrdienst: 1969-1971

Ausbildung und Berufstätigkeit:
1971-1978 Studium der Physik an der
Eberhard-Karls-Universität
Tübingen
März 1974 Diplomvorprüfung
Aug. 1978 Diplomhauptprüfung
Seit 1978 Wissenschaftlicher Angestellter
des Instituts für Kristallographie
der Universität Tübingen

Arbeitsgebiete: 1978-1979 Röntgenbeugungsexperimente an
Selten-Erde-Einkristallen
ab 1979 Dissertation unter Anleitung
von Herrn Prof. Dr. W. Prandl. Thema
der Arbeit: Bestimmung der inkommen-
surablen Verzerrungswelle des Anti-
ferromagneten Chrom mit Röntgen-
beugungsexperimenten

Meine akademischen Lehrer waren:

M.Baumann, G.Breitling, G.Elwert, R.Geller, F.Gönnenwein,
W.Güttinger, R.Hübener, I.Jahn, K.Knorr, H.Krüger, E.Lindner
O.Lutz, G.Mack, G.Mertens, H.Mitter, G.Möllenstedt,
R.Mühleisen, H.Pfister, W.Prandl, R.Schief, E.Schmid,
H.Sohr, R.Speidel, G.Staudt, H.Stumpf

Druck: Zeeb-Druck, Tübingen 7 (Hagelloch)